

ORSAY
Série A
N° d'ordre :
147

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR INGÉNIEUR

par

Claude BRICHET

Sujet:

Etude des stades successifs de décomposition de la solution solide sursaturée Al-Mg-Si à 0,8% de Mg_2Si par mesure de la résistivité et de la limite élastique en liaison avec l'examen de la structure au microscope électronique.

Soutenue le 26 octobre 1971 devant la Commission d'examen

M. A. GUINIER, Président
MM. P. LACOMBE et J. PHILIBERT, Examineurs
M. E. BLOCH, Membre invité

ORSAY
Série A
N° d'ordre :
147

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR INGÉNIEUR

par

Claude BRICHET

Sujet:

Etude des stades successifs de décomposition de la solution solide sursaturée Al-Mg-Si à 0,8% de Mg_2Si par mesure de la résistivité et de la limite élastique en liaison avec l'examen de la structure au microscope électronique.

Soutenue le 26 octobre 1971 devant la Commission d'examen

M. A. GUINIER, Président
MM. P. LACOMBE et J. PHILIBERT, Examineurs
M. E. BLOCH, Membre invité

ORSA
Série A
N° 147

THÈSE

Présentée

A L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR INGÉNIEUR

par

Claude BRICHET



Présentée

En vue de la soutenance de la thèse de doctorat en ingénierie
par M. Claude BRICHET, ingénieur diplômé de l'École Nationale
Supérieure des Arts et Métiers (ENSA) et de l'École Nationale
Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace (ENSAE).

Soutenance le 25 octobre 1971 devant la Commission d'examen

M. A. GUINIER, Président
M. A. JACOBES et J. PHILIBERT, Examinateurs
M. E. BLOCH, Membre Invité



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543720_0037

A mes parents

REMERCIEMENTS

En premier lieu, nous tenons à remercier Monsieur le Professeur P. LECHE, Directeur de l'École de Chimie et de Physique de l'École des Mines de Paris, pour l'honneur qu'il nous a fait en nous accueillant dans son laboratoire et pour la confiance qu'il nous a témoignée en nous permettant de participer à ses recherches scientifiques et de contribuer à son enseignement.

Notre reconnaissance s'adresse également à Monsieur le Professeur A. CHATELAIN, Directeur de l'Institut de Chimie de l'École des Mines de Paris, pour l'honneur qu'il nous a fait en nous accueillant dans son laboratoire et pour la confiance qu'il nous a témoignée en nous permettant de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement.

Notre reconnaissance s'adresse également à Monsieur le Professeur J. L. LECHE, Directeur de l'Institut de Chimie de l'École des Mines de Paris, pour l'honneur qu'il nous a fait en nous accueillant dans son laboratoire et pour la confiance qu'il nous a témoignée en nous permettant de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement.

En second lieu, nous tenons particulièrement à remercier Monsieur S. WIT, Maître Assistant à l'École des Mines de Paris, qui nous a fait l'honneur de nous accueillir dans son laboratoire et de nous permettre de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement. Nous tenons également à remercier Monsieur A. BARBARA, Maître Assistant à l'École des Mines de Paris, qui nous a fait l'honneur de nous accueillir dans son laboratoire et de nous permettre de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement.

Notre reconnaissance s'adresse également à Monsieur le Professeur J. L. LECHE, Directeur de l'Institut de Chimie de l'École des Mines de Paris, pour l'honneur qu'il nous a fait en nous accueillant dans son laboratoire et pour la confiance qu'il nous a témoignée en nous permettant de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement. Nous tenons également à remercier Monsieur A. BARBARA, Maître Assistant à l'École des Mines de Paris, qui nous a fait l'honneur de nous accueillir dans son laboratoire et de nous permettre de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement. Nous tenons également à remercier Monsieur J. L. LECHE, Directeur de l'Institut de Chimie de l'École des Mines de Paris, pour l'honneur qu'il nous a fait en nous accueillant dans son laboratoire et pour la confiance qu'il nous a témoignée en nous permettant de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement. Nous tenons également à remercier Monsieur A. BARBARA, Maître Assistant à l'École des Mines de Paris, qui nous a fait l'honneur de nous accueillir dans son laboratoire et de nous permettre de participer à ses recherches et de contribuer à son enseignement.

REMERCIEMENTS

En premier lieu, nous tenons à remercier vivement Monsieur le Professeur P. LACOMBE, Directeur du Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole des Mines et Professeur à la Faculté des Sciences d'Orsay, qui à la demande du Centre de Recherches de l'Aluminium Suisse à Neuhausen nous a accueilli dans son laboratoire pour y préparer sous sa direction scientifique cette thèse de Doctorat.

Nous exprimons également nos remerciements à Monsieur le Professeur A. GUINIER, Membre de l'Institut, pour l'intérêt qu'il a bien voulu témoigner à nos recherches en acceptant de présider le jury de notre thèse.

Nos remerciements vont aussi à Monsieur le Professeur J. PHILIBERT qui a bien voulu accepter d'examiner notre travail et de faire partie de notre jury.

En second lieu, nous sommes particulièrement reconnaissant envers Monsieur G. WYON, Maître Assistant à l'Ecole des Mines de Paris, qui non seulement nous a fait profiter de sa longue expérience dans le domaine de l'aluminium et de ses alliages légers en nous initiant à de délicates techniques expérimentales, mais aussi nous a dirigé presque journallement dans le développement de nos recherches.

Nous remercions également tous nos camarades des Centres de Recherches de Paris et d'Orsay pour l'aide qu'ils nous ont toujours prodiguée sans compter : Messieurs M. LEROY et J.P. MIRAILLE nous ont éclairé sur le plan théorique et leurs conseils furent toujours particulièrement précieux ; Messieurs L. PEETERS et C. ROQUES-CARMES nous ont également fait profiter de leur expérience dans le domaine des joints de grains. Quant à Mesdames J. PERRIER et A. ELLEZAM et Monsieur M. BARTHET, leur dévouement et leur collaboration ont permis la réalisation matérielle de ce document. Qu'ils soient tous ici très sincèrement remerciés.

Nous ne saurions trop être reconnaissant vis à vis de la Société Aluminium Suisse qui non seulement nous a apporté l'aide matérielle au cours de notre détachement à l'Ecole des Mines, mais aussi a pris à sa charge la préparation des matériaux de haute pureté nécessaires à cette étude. En outre, nous devons plus particulièrement remercier Monsieur D.G. ALTENPOHL, Directeur du Département Recherches et Développement et Monsieur E.A. BLOCH, Directeur scientifique et ancien Directeur de Centre de Recherches de l'Aluminium Suisse, qui ont fait preuve d'un grand libéralisme en nous laissant le choix du thème de nos recherches, concrétisant ainsi l'intérêt qu'ils portent aux liaisons entre Université et Industrie.

Nous n'oublions pas enfin Monsieur B. BICHSEL, responsable des recherches sur les alliages au Centre de Recherches de Neuhausen am Rheinfall, avec qui nous avons pu avoir de fructueuses discussions et qui a bien voulu suivre de très près l'avancement de cette étude.

TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
<u>CHAPITRE I - INTRODUCTION</u>	1
1. GENERALITES SUR LES ALLIAGES A DURCISSEMENT STRUCTURAL	1
1.1. RAPPEL HISTORIQUE	1
1.2. PROCESSUS DE DECOMPOSITION D'UNE SOLUTION SOLIDE SURSATUREE	3
1.2.1. Détermination par les propriétés mécaniques	3
1.2.2. Détermination par la résistivité	6
2. GENERALITES SUR LES ALLIAGES Al-Mg-Si	7
2.1. RAPPEL HISTORIQUE	7
2.2. CONSTITUTION D'EQUILIBRE DES ALLIAGES Al-Mg-Si	9
2.3. PROCESSUS DE DECOMPOSITION DE LA SOLUTION SOLIDE SURSATUREE DES ALLIAGES Al-Mg ₂ Si	11
2.4. EVOLUTION DES PROPRIETES MECANQUES DES ALLIAGES Al-Mg ₂ Si	15
2.5. EVOLUTION DE LA RESISTIVITE DES ALLIAGES Al-Mg ₂ Si	15
3. BUTS DE L'ETUDE ENTREPRISE	16
<u>CHAPITRE II - METHODES EXPERIMENTALES</u>	19
1. ALLIAGES EMPLOYES	19
2. EPROUVETTES UTILISEES	20
3. TRAITEMENTS THERMIQUES REALISES	20
3.1. TRAITEMENTS DE MISE EN SOLUTION	20
3.2. TRAITEMENTS DE TREMPÉ	22
3.3. TRAITEMENTS DE VIEILLISSEMENT	23
4. ESSAIS REALISES	24
4.1. ESSAIS DE TRACTION	24
4.2. MESURES DE RESISTIVITE	24

4.3. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE	29
<u>CHAPITRE III - RESULTATS OBTENUS</u>	32
1. VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS	34
1.1. VARIATION DE LA LIMITE ELASTIQUE	35
1.1.1. Limite élastique des états initiaux	35
1.1.2. Evolution du "durcissement"	37
1.2. VARIATION DE LA RESISTIVITE	38
1.2.1. Résistivité des états initiaux	40
1.2.2. Evolution de la résistivité	40
1.3. OBSERVATION DE LA MICROSTRUCTURE AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE	45
1.3.1. Structures observées après trempe à l'eau	45
1.3.2. Structures observées après trempe à l'alcool	48
1.3.3. Structures observées après réversion et après trempe étagée	51
2. VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE	51
2.1. VIEILLISSEMENTS A 160°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPÉ A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 40)	52
2.2. VIEILLISSEMENTS A 200°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPÉ A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 41)	52
2.3. VIEILLISSEMENTS A 250°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPÉ A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 42)	54
3. ESSAIS PARTICULIERS DE REVERSION	55
3.1. REVERSION DES PROPRIETES MECANIQUES ET ELECTRIQUES D'UN ETAT VIEILLI 100 HEURES A 20°C APRES TREMPÉ A L'EAU	56
3.2. REVERSION DES PROPRIETES MECANIQUES ET ELECTRIQUES D'UN ETAT VIEILLI 100 HEURES A 20°C APRES TREMPÉ A L'ALCOOL	58
<u>CHAPITRE IV - DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS</u>	59
1. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS	59
1.1. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LA STRUCTURE DES DIFFERENTS ETATS INITIAUX	60

1.2. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS APRES TREMPE A L'EAU	64
1.2.1. Séquence possible de précipitation après trempe à l'eau	65
1.2.1.1. <i>Déductions des résultats relatifs aux mesures de la limite élastique</i>	65
1.2.1.2. <i>Déductions des résultats relatifs aux mesures de la résistivité</i>	65
1.2.1.3. <i>Déductions des résultats relatifs aux observations de la microstructure</i>	67
1.2.2. Interprétation des phénomènes observés au cours des vieillissements après trempe à l'eau	68
1.2.2.1. <i>Modes possibles d'élimination des lacunes en sursaturation</i>	69
i) Elimination des lacunes aux interfaces	69
ii) Elimination des lacunes sur les dislocations	69
iii) Ségrégation des lacunes sous forme de clusters ou de boucles	70
1.2.2.2. <i>Modes possibles de ségrégation des atomes de soluté en sursaturation</i>	71
1.3. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS APRES TREMPE A L'ALCOOL	75
1.3.1. Séquence possible de précipitation après trempe à l'alcool	75
1.3.1.1. <i>Déductions des résultats relatifs aux mesures de la limite élastique</i>	75
1.3.1.2. <i>Déductions des résultats relatifs aux mesures de la résistivité</i>	76
1.3.1.3. <i>Déductions des résultats relatifs aux observations de la microstructure</i>	77
1.3.2. Interprétation des phénomènes observés au cours des vieillissements après trempe à l'alcool	78
1.3.3. Remarques concernant la cinétique de précipitation et l'amplitude du durcissement	79

1.4. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS A PARTIR D'UN ETAT REVERTI	81
1.5. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS PAR TREMPE ETAGEE	83
1.6. SYNTHESE DES INTERPRETATIONS RELATIVES AUX RESULTATS FOURNIS PAR LES VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS	84
2. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX VIEILLISSEMENTS AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE	90
2.1. CAS DES ECHANTILLONS TREMPES A L'EAU	92
2.2. CAS DES ECHANTILLONS TREMPES A L'ALCOOL	92
3. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX ESSAIS DE REVERSION	96
<u>CHAPITRE V - CONCLUSIONS</u>	103
1. REMARQUES GENERALES	103
2. PRINCIPAUX RESULTATS OBTENUS	104
2.1. SEQUENCE DES STADES D'EVOLUTION STRUCTURALE DES ALLIAGES $Al-Mg_2Si$	104
2.2. INFLUENCE DES LACUNES SUR LES PROCESSUS DE DECOMPOSITION	105
2.3. ROLE DES DISLOCATIONS SUR LES PROPRIETES MECANIQUES MAXIMALES	106
2.4. STABILITE DES ZONES DE GUINIER-PRESTON	106

ETUDE DES STADES SUCCESSIFS DE DECOMPOSITION DE LA SOLUTION
SOLIDE SURSATUREE Al-Mg-Si A 0,8% DE Mg_2Si PAR MESURE DE
LA RESISTIVITE ET DE LA LIMITE ELASTIQUE EN LIAISON AVEC
L'EXAMEN DE LA STRUCTURE AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE

CHAPITRE I - INTRODUCTION

Parmi les alliages légers, ceux appartenant à la famille Al-Mg-Si sont parmi les plus utilisés dans l'industrie, puisqu'ils possèdent à la fois d'excellentes propriétés mécaniques et une bonne résistance à la corrosion. De plus, ils sont assez faciles à mettre en forme, par laminage, filage à la presse ou forgeage. Leurs excellentes performances, tant en ce qui concerne les propriétés mécaniques que la conductibilité justifient leur emploi pour l'huissierie métallique et pour la construction électrique. De telles propriétés sont obtenues, comme pour tous les alliages légers, par des traitements thermiques de trempe suivie d'un revenu.

On sait que les modifications structurales se produisant durant les traitements thermiques après trempe sont caractérisées par une décomposition de la solution sursaturée constituant l'alliage, et les produits formés sont responsables de l'augmentation des propriétés mécaniques. Ce phénomène est appelé couramment "durcissement structural".

1. GENERALITES SUR LES ALLIAGES A DURCISSEMENT STRUCTURAL

1.1. RAPPEL HISTORIQUE

Au début du siècle, WILM (1) découvrit le phénomène du "durcissement structural". En effet, en étudiant un alliage à base d'aluminium contenant quelques pour cent de cuivre, un peu de magnésium, de manganèse et de silicium, il constata, après trempe depuis des températures élevées, l'augmentation de la dureté au cours d'un maintien à des températures voisines de l'ambiante. Cet alliage fut rapidement répandu sous le nom significatif de "DURALUMIN" (2).

Les premières bases théoriques du durcissement furent données en

1919 par les publications aujourd'hui classiques de MERICA et ses collaborateurs (3, 4, 5). Les premiers ils firent le lien entre le durcissement et la variation de la solubilité du cuivre dans l'aluminium en fonction de la température.

Aucune modification de la structure n'étant visible au microscope optique, leur théorie de la "dispersité" de Al_2Cu en particules ayant une taille submicroscopique fut longuement discutée. Mais finalement les travaux systématiques de FRAENKEL (6, 7, 8, 9) et de GAYLER (10, 11, 12, 13) montrèrent que ce durcissement à basse température ne pouvait être dû à la précipitation de la phase Al_2Cu .

Il fallut attendre vingt ans pour qu'une nouvelle technique permette de fournir une explication du phénomène de durcissement structural. En 1935 à l'aide des rayons X, WASSERMANN et WEERTS (14) puis FINK et SMITH (15) identifient une phase intermédiaire distincte qui apparaît avant le précipité stable Al_2Cu et la dénomment θ' , pour la distinguer clairement de la phase finale θ (Al_2Cu).

En 1939, GUINIER (16, 17) et PRESTON (18) publient simultanément de nouveaux travaux sur la diffusion des rayons X dans le système Al-Cu. Dans les deux cas, le durcissement à basse température est interprété comme résultant de la ségrégation d'atomes de cuivre en petits amas plats dans certains plans cristallographiques des cristaux de l'alliage. La formation de ces amas précède celle de θ' et de θ , et ces localisations riches en cuivre ont été appelées, depuis lors, "zones de GUINIER-PRESTON".

Les travaux ultérieurs de GUINIER (19, 20) sur le même alliage devaient encore montrer l'existence d'une phase supplémentaire dans la séquence de précipitation entre les zones riches en cuivre et la phase θ' . GUINIER l'a dénommée phase θ'' , HARDY et HEAL (21) l'ont qualifiée ultérieurement de "GP-II" (par analogie avec "GP-I" concernant le premier produit de décomposition).

Ces deux études originales, entreprises parallèlement par GUINIER et PRESTON sur la diffusion des rayons X dans le système Al-Cu furent le point de départ des recherches fondamentales sur tous les systèmes à durcissement structural : les binaires Al-Cu, Al-Zn, Al-Ag et Al-Mg ; les ternaires Al-Zn-

Mg, Al-Cu-Mg et Al-Mg-Si et finalement les quaternaires Al-Cu-Mg-Si et Al-Zn-Mg-Cu.

C'est alors qu'une nouvelle invention vint révolutionner les recherches concernant le durcissement structural : le microscope électronique à transmission, seul moyen permettant l'observation directe des premières phases de précipitation.

1.2. PROCESSUS DE DECOMPOSITION D'UNE SOLUTION SOLIDE SURSATUREE

Les connaissances sur la nature des phases de décomposition des alliages, acquises par les méthodes de rayons-X et par la microscopie électronique, permirent de faire le lien entre la structure et les propriétés physiques telles que la dureté, la résistivité, la dilatométrie ou la calorimétrie.

Ainsi les particularités dans l'évolution des propriétés mécaniques et celles de la résistivité purent être interprétées en termes de modifications de structure. L'alliage aluminium-cuivre à 4% de Cu en est un exemple caractéristique ; dans cet alliage la précipitation a lieu schématiquement en quatre étapes distinctes :



Selon le stade de décomposition atteint, les propriétés mécaniques et électriques de l'alliage Al-Cu sont alors différentes.

1.2.1. Détermination par les propriétés mécaniques

En ce qui concerne les propriétés mécaniques, il a été constaté que ces propriétés présentent, au cours de vieillissements isothermes, trois types de courbes distinctes et caractéristiques d'un mode de précipitation (22) :

- aux températures modérées (inférieures à 100°C environ), la dureté augmente jusqu'à une certaine valeur, puis reste constante (fig. 1, A) ;

- aux températures élevées (supérieures à 200°C), la dureté augmente après un certain temps d'incubation, passe par un maximum, puis diminue (fig. 1 B) ;
- aux températures intermédiaires (entre 100 et 200°C), les courbes sont une combinaison des deux types précédents. L'alliage subit alors deux augmentations de dureté séparées par un palier et suivies d'une chute de dureté (fig. 1 C).

Selon le travail de SILCOCK, HEAL et HARDY (23), les courbes du type A sont liées à la formation de zones de GUINIER-PRESTON, tandis que les courbes du type B sont dues au développement des phases θ' et θ . Le durcissement est surtout important dans le cas des traitements donnant des courbes du type mixte (C), où la première montée est liée à la formation de zones et où le maximum correspond à un état contenant principalement de la phase "GP-II", avec un peu de θ' . L'adoucissement après le maximum est alors attribué au développement de la phase θ' (fig. 2).

A température croissante, on constate que le palier des courbes du type mixte se raccourcit, de sorte qu'on passe progressivement des courbes du type C aux courbes du type B, ce qui correspond à la suppression progressive de la formation des zones.

En employant la terminologie de KOSTER (24), on peut dire que les courbes du type A sont caractéristiques du durcissement "à froid" (Kaltaushärtung), tandis que les courbes du type B indiquent le durcissement "à chaud" (Warmaushärtung). Les courbes du type mixte correspondent à la succession de ces deux modes de durcissement.

Une autre particularité du durcissement est le fait que celui-ci peut être réversible à la suite de certains traitements thermiques. Si un alliage vieilli à une température donnant lieu au durcissement du type A est soumis à un court traitement à une température supérieure à celle produisant un durcissement du type C (mixte), sa dureté est ramenée à celle de l'état trempé. C'est là le phénomène de "réversion". En d'autres termes, la température capable de révertir entièrement un état durci par le type A correspond à la température minimale produisant un durcissement du type B. Dans le cas de l'alliage Al-Cu ceci veut dire que les zones de GUINIER-PRESTON sont ré-

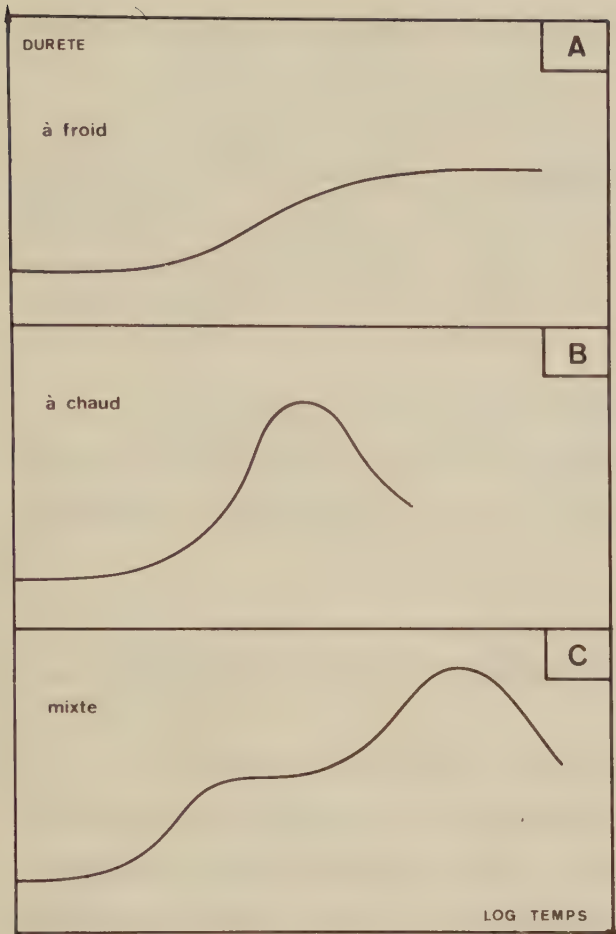


Fig. 1 - Schéma des évolutions possibles du durcissement en fonction du temps.

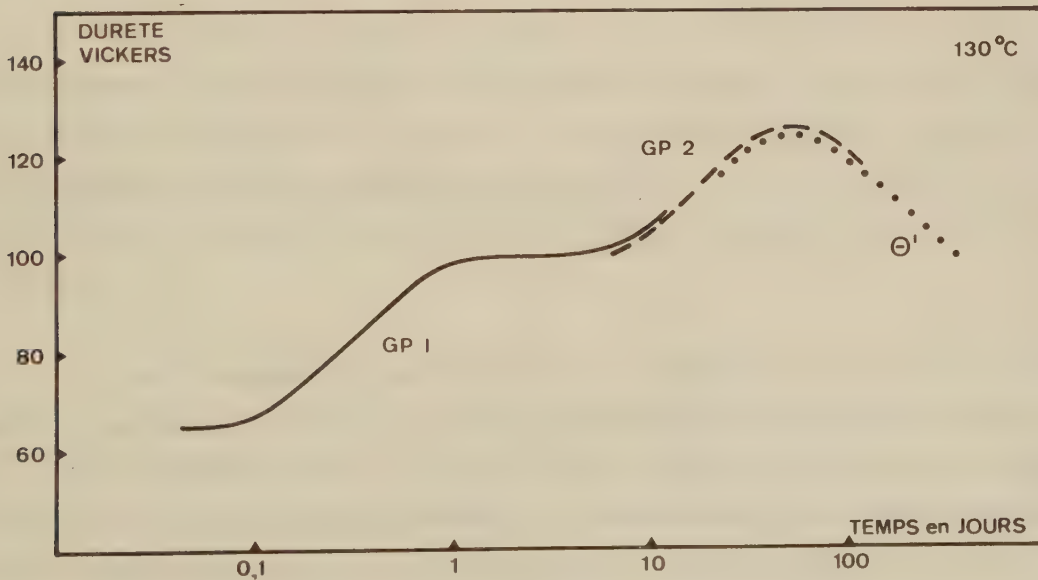


Fig. 2 - Corrélation entre le durcissement du type "mixte" et les stades de décomposition de la solution solide Al-4%Cu d'après SILCOCK, HEAL et HARDY (23).

verties lorsque la température dépasse celle nécessaire à leur formation.

Puisque la réversion n'est rien d'autre que la dissolution d'un produit de précipitation, la température de réversion correspond à la limite de stabilité ou de solubilité de ce produit. Par cette méthode BETON et ROL-LASON (25) ont déterminé la courbe de solubilité (métastable) des zones de Guinier-Preston I dans le système Al-Cu et même celle des zones "GP II".

L'analyse des courbes de propriétés mécaniques permet donc de séparer les différentes phases de précipitation et donne des indications sur leur domaine de formation et sur leur stabilité (essais de réversion).

1.2.2. Détermination par la résistivité

En ce qui concerne la résistivité, celle-ci n'a pratiquement été utilisée que pour étudier les processus de précipitation à basse température et notamment la formation des zones de Guinier-Preston. A des températures plus élevées, donnant lieu à la précipitation des phases intermédiaires (type θ') ou stable (type θ), un seul travail de MURAKAMI (26), précisément sur les alliages Al-Mg-Si est connu (voir plus loin).

Les zones de Guinier-Preston ont la particularité de faire augmenter initialement la résistivité, contrairement à ce que l'on constate lors d'une précipitation véritable. En effet l'introduction d'atomes de soluté en solution homogène dans un métal augmente sa résistivité, l'on s'attendrait à ce que tout rassemblement ou toute précipitation de ceux-ci conduise à une décroissance de la résistivité.

Cette augmentation initiale de la résistivité a été reliée par de nombreux auteurs (27, 28, 29) à la taille très petite de ces zones, suivant en cela l'hypothèse initiale de MOTT (30). Les vérifications directes de cette relation, par exemple par MURAKAMI (31) ou DARTYGE (32) sont cependant loin d'être convaincantes, et un doute profond a été jeté sur les études théoriques précédentes par SMUGERESKI (33) qui a montré que les modèles de conduction utilisés étaient inexacts.

Malgré le manque de connaissances sur la nature du phénomène, les mesures de résistivité sont un moyen très utile pour reconnaître la présence des zones de Guinier-Preston aux premiers instants d'un vieillissement, alors que celles-ci sont encore si petites, que nulle autre méthode n'est capable de les identifier.

L'étude de la cinétique du processus de rassemblement des atomes de soluté a permis de définir le rôle important que jouent les lacunes dans la formation des zones. TURNBULL (34) et FEDERIGHI (35) ont notamment constaté que dans beaucoup d'alliages à durcissement structural, l'évolution de la résistivité se produit en deux étapes distinctes ; une première très rapide (fast reaction) et une deuxième plus lente (slow reaction). Lors de la réaction rapide, les lacunes libres permettent aux atomes de soluté de se rassembler très vite pour former des zones, mais au fur et à mesure que celles-ci se forment, les lacunes s'éliminent et ralentissent ainsi la réaction. L'élimination des lacunes se fait soit par leur rassemblement sous forme de "clusters" ou de boucles, soit par leur piégeage dans les zones de Guinier-Preston elles-mêmes. Les interactions lacune-soluté et lacune-zones sont donc ici les facteurs déterminants, mais il est difficile de trancher entre les deux mécanismes possibles et l'on trouve des défenseurs des deux hypothèses dans les travaux publiés. Un récent article de KIMURA (36) résume bien la situation.

2. GENERALITES SUR LES ALLIAGES Al-Mg-Si

2.1. RAPPEL HISTORIQUE

Aussitôt après la découverte du Duralumin par WILM (1, 2), des recherches empiriques sur des systèmes analogues furent entreprises. Ainsi, déjà en 1916, dans les laboratoires des usines GIULINI à Münchenstein (Suisse), HALLMANN étudia le comportement de plusieurs alliages légers et reconnut parmi eux l'intérêt technique des alliages Al-Mg-Si, qu'il fit immédiatement breveter en Suisse (37) et à l'étranger (38).

Un peu plus tard, HANSON et GAYLER (39) s'aperçurent que dans le duralumin, le magnésium et le silicium, précipitant sous forme de composé intermétallique Mg_2Si , étaient susceptibles de causer un durcissement non négligeable. Sachant que ces atomes eux-mêmes étaient capables de produire dans l'aluminium un durcissement considérable, ce nouveau type d'alliage fut rapidement répandu.

Avec l'évolution foudroyante de la consommation d'énergie électrique vers 1920, la construction des lignes aériennes ouvrit un débouché intéressant aux alliages légers, à condition qu'ils soient suffisamment solides et puissent résister à la corrosion tout en ayant la bonne conductibilité électrique que possède l'aluminium. Dans les laboratoires de l'"Aluminium Suisse" à Neuhausen, un alliage contenant un peu moins de Mg et Si et répondant à ces besoins fut développé en 1924 et fut commercialisé sous le nom d'"ALDREY" (40). Des alliages analogues furent également produits en France ("ALMELEC") et en Angleterre ("SILMALEC").

Par la suite, d'autres alliages Al-Mg-Si furent développés pour être utilisés dans la construction, notamment dans l'huissierie métallique. Ils sont connus sous le nom d'"ALMASILIUM" ou de "ASG" en France et d'"ANTICORRODAL" (41) en Suisse.

Mais avec la nécessité industrielle de réaliser le filage à la presse de plus en plus vite et de laminier par des passes de moins en moins nombreuses, une tendance se fit sentir qui consiste à diminuer la concentration en Mg et Si ; dans ce sens les alliages ultrafaciles à filer à la presse, tels que les "A-GS" en France et les "EXTRUDAL" et "RAPIDEX" en Suisse, contenant 0,4 à 0,7% de Mg et 0,3 à 0,55% de Si, furent développés (42, 43).

Ainsi les alliages Al-Mg-Si envahirent le marché ; actuellement l'on peut considérer qu'un tiers de tous les alliages légers produits sont du type Al-Mg-Si. Mais bien que la plus utilisée industriellement, c'est la classe d'alliages, dont les mécanismes de durcissement structural sont les moins connus. Nous verrons donc maintenant les principaux travaux relatifs à l'étude de ces alliages.

2.2. CONSTITUTION D'EQUILIBRE DES ALLIAGES Al-Mg-Si

Le côté riche en aluminium du diagramme ternaire Al-Mg-Si a été établi par HARRIS (44) puis par EVANS (45). La figure 3 montre le diagramme ternaire, dans lequel les isothermes 540, 520, 480 et 160°C séparent les domaines d'existence des phases α , $\alpha + \text{Mg}_2\text{Si}$, $\alpha + \text{Mg}_2\text{Si} + \text{Si}$ et $\alpha + \text{Si}$; la position des alliages industriels courants y est également repérée.

Le magnésium et le silicium, lorsque le rapport des constituants en poids est égal à 1,73, forment le composé intermétallique Mg_2Si . La structure de Mg_2Si a été étudiée par OWEN et PRESTON (46). Ce composé est anti-isomorphe du fluorure de calcium CaF_2 (cf. fig. 4). Cela signifie que le magnésium et le silicium, dans Mg_2Si occupent respectivement les noeuds occupés par le fluor et le calcium dans CaF_2 . Le paramètre de la maille est égal à 6,39 Å.

Un diagramme d'équilibre quasibinaire -coupe du diagramme ternaire (indiquée dans la fig. 3)- peut d'ailleurs être établi (cf. fig. 5) et l'on voit que la solubilité de Mg_2Si dans l'aluminium décroît depuis un maximum de 1,85% (à la température eutectique) jusqu'à 0,2% à 200°C et qu'elle est pratiquement nulle à 20°C. Cette solubilité décroissante est, selon la théorie originale de MERICA, une condition nécessaire pour pouvoir observer le phénomène de durcissement structural.

Il faut cependant noter que la plupart des alliages industriels présentent un excès de silicium par rapport à Mg_2Si^* (voir fig. 3), mais comme pratiquement tous les travaux fondamentaux publiés n'ont considéré que le système Al- Mg_2Si et comme nos essais eux aussi sont effectués sur un alliage quasibinaire, nous ne parlerons par la suite que de ce type d'alliage.

* Les propriétés mécaniques optimales sont en fait obtenues avec un excès de silicium (en poids on a environ $\text{Mg}/\text{Si} = 1/1$). C'est un fait expérimental dont l'interprétation physique n'a pas encore été donnée. On pense que la germination peut être affinée si le Si est en excès. Mais ce n'est pas le but du présent travail d'expliquer ce phénomène.

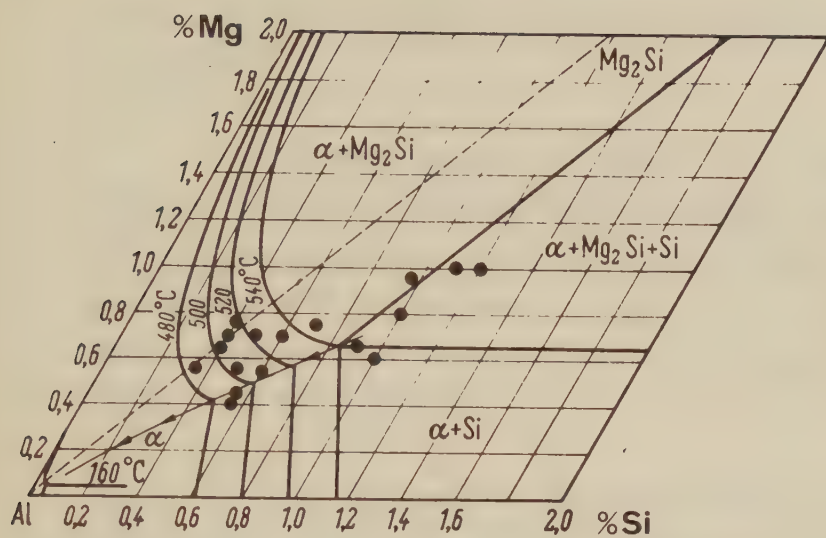


Fig. 3 - Côté riche en aluminium du diagramme ternaire Al-Mg-Si. Les points noirs repèrent la position des alliages commerciaux les plus utilisés.

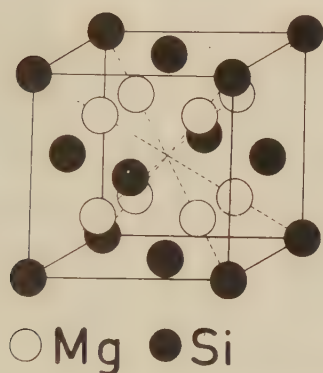


Fig. 4 - Structure du composé intermétallique Mg_2Si .

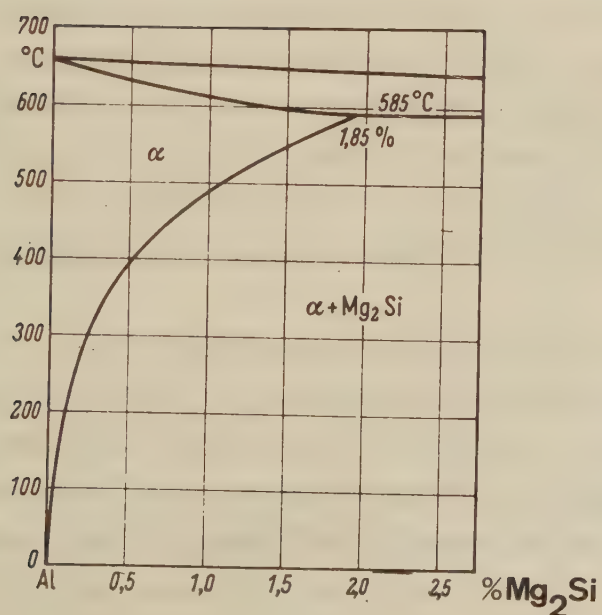


Fig. 5 - Diagramme d'équilibre du système quasi-binaire Al- Mg_2Si .

2.3. PROCESSUS DE DECOMPOSITION DE LA SOLUTION SOLIDE SURSATURÉE DES ALLIAGES Al-Mg₂Si

En ce qui concerne la connaissance des différentes étapes de la décomposition de la solution solide Al-Mg₂Si, peu de résultats certains ont été publiés. En effet, dans les alliages Al-Mg₂Si, les trois atomes composants se trouvent côte à côte dans la classification périodique des éléments et possèdent ainsi un facteur de diffusion pratiquement identique vis-à-vis des rayons X et des électrons.

C'est pourquoi les premières modifications de propriétés après trempe, telles que le durcissement ou l'augmentation de la résistivité à température ambiante, ne peuvent pas être reliées à une évolution de la structure détectable aux rayons X ou par micrographie et microdiffraction électronique.

De plus, les travaux publiés ont trait à des alliages ayant des teneurs assez diverses en Mg₂Si et font appel à des méthodes expérimentales également assez variées. Les renseignements que l'on peut en tirer ne sont pas très cohérents, il est donc difficile d'établir une séquence générale de la précipitation dans les alliages Al-Mg₂Si. Pour ces raisons, nous citerons les travaux séparément et nous verrons ensuite quels en sont les points communs et quelles en sont les divergences.

a) GEISLER et HILL (47) utilisant des monocristaux d'un alliage à 1,4% de Mg₂Si et la méthode de LAUE, attribuent les effets de diffusion anormale observés après 4 heures de revenu à 220°C à la présence, dans la matrice, de petits cristallites du précipité Mg₂Si sous forme de filaments se transformant ensuite en plaquettes toujours submicroscopiques. Avant l'apparition du vrai précipité observable au microscope, il se forme, d'après ces auteurs, un précipité intermédiaire, dont ils ne définissent pas la structure.

b) L'interprétation des effets de diffusion des rayons X donnée par GEISLER et HILL fut rejetée par GUINIER et LAMBOT (48) puis par LAMBOT (49). D'après leurs travaux sur un alliage à 0,8% de Mg₂Si, les premières modifications de la structure de trempe sont détectées autour de 150°C. Elles se traduisent par la ségrégation d'atomes de Mg et de Si en "zones" filiformes parallèles aux axes $\langle 100 \rangle$ de la matrice. A l'intérieur de ces filaments les

atomes gardent la périodicité de la maille de l'aluminium, mais leur disposition mutuelle n'est pas régulière. La longueur des "zones" est alors de l'ordre de 100 Å et leur diamètre vraisemblablement de deux distances interatomiques. A plus basse température, les "zones" seraient plus petites et le désordre moins grand, ce qui rend la diffusion trop faible pour être accessible à l'expérience.

En poursuivant le recuit, les auteurs constatent un épaississement de ces filaments donnant lieu à une organisation progressive de leur structure interne, initialement sans ordre, et ceci dans les directions perpendiculaires à leur axe. Cette organisation respecte toujours la périodicité longitudinale de 4,04 Å et amène les filaments à se juxtaposer pour former des "paquets" possédant alors, en plus, une périodicité transversale.

Cette mise en ordre progressive aboutit à plus haute température ($\sim 300^\circ\text{C}$) à la formation d'un précipité véritable (donnant des taches nettes sur les diagrammes de rayons X). C'est alors le précipité final et stable β , qui apparaît avec des taches correspondant à celles de la structure du composé intermétallique Mg_2Si . L'orientation cristallographique du précipité n'est d'ailleurs pas quelconque puisque l'on a une épitaxie purement linéaire avec la seule relation : $[-110]_{\text{Mg}_2\text{Si}} // [-100]_{\text{Al}}$.

c) LUTTS (50) (51), sur un alliage semblable (à 0,7% de Mg_2Si) a poursuivi les travaux de GUINIER et LAMBOT et précisé quelques points concernant les premières étapes de la précipitation. Lui non plus n'a pas décelé d'évolution de l'état trempé pour des températures de revenu inférieures à 135°C environ. A partir de quelques heures à 135°C , il constate les mêmes effets de diffusion des rayons X que les auteurs précédents, mais avec des mesures plus précises, notamment la diffusion aux petits angles, il en déduit l'évolution suivante :

- le premier stade consiste comme précédemment, en l'organisation des atomes Mg et Si le long des directions $\langle 100 \rangle$ de la matrice. Ces zones de GUINIER-PRESTON filiformes n'auraient au début aucune périodicité le long de leur axe et retiendraient un grand nombre de lacunes. Cette dernière particularité est déduite des anomalies que présente la diffusion aux petits angles.

- le deuxième stade est caractérisé par l'établissement d'une périodicité le long de l'axe des filaments (périodicité de $4,04 \text{ \AA}$) accompagnée de la disparition des lacunes primitivement contenues dans les zones. Le domaine d'existence de ces zones s'étend de 135 à 150°C où elles se développent seules ; au-delà, et jusqu'à 300°C , elles se forment initialement, mais disparaissent au bout d'un certain temps en faveur du ...

- troisième stade, qui est le précipité stable β (Mg_2Si), avec les relations d'orientation identiques à celles déterminées par LAMBOT. Il faut noter cependant que des études de LUTTS sur deux alliages Al-Mg₂Ge (1% et 1,4% de Mg₂Ge), ont révélé les mêmes mécanismes que ceux de l'alliage Al-Mg₂Si avec en plus l'apparition d'un précipité intermédiaire ayant une structure bien définie. Cette phase est c.f.c. avec un paramètre de $7 \text{ \AA}$ et elle présente une relation d'orientation planaire avec la matrice puisque l'on a :

$$(110)_{\text{P.i}} // (100)_{\text{Al}} \quad \bar{L}^{-} \bar{1}10 \bar{J}_{\text{P.i}} // \bar{L}^{-}001 \bar{J}_{\text{Al}}$$

La question se pose alors de savoir si dans l'alliage Al-Mg₂Si un tel précipité intermédiaire peut exister sans être perceptible.

d) La dernière publication relative aux étapes de précipitation dans les alliages Al-Mg₂Si a été faite par G. THOMAS (52). Sur un alliage à 1,53% de Mg₂Si et par microscopie électronique il a trouvé les résultats suivants :

- A l'état trempé et vieilli à des températures voisines de l'ambiante aucune modification de la structure n'est apparente. Il faut remarquer que, par rapport à d'autres alliages (tels que Al-Zn ou Al-Cu), seule une très faible quantité de boucles et d'hélices est présente dans cet alliage.

- Le premier signe d'une modification de structure se manifeste sur les clichés de diffraction après un vieillissement de 1 heure à 70°C . Des traînées de diffusion indiquent alors la formation de zones filiformes parallèles à $\langle 100 \rangle$ de la matrice. Pour des températures légèrement supérieures et après des temps prolongés, les zones croissent en longueur mais très peu en épaisseur. A ce stade, de très fines aiguilles orientées selon les trois directions $\langle 100 \rangle$ de la matrice sont visibles sur les micrographies électroniques ; elles atteignent une longueur maximale d'environ $1000 \text{ \AA}$ sur une épaisseur de $60 \text{ \AA}$. Leur densité est de l'ordre de $10^{15} / \text{cm}^3$.

- Lors d'un vieillissement à plus de 200°C , les traînées de diffusion n'existent plus et l'auteur observe des batonnets plus importants en taille

que les aiguilles, mais en nombre plus faible ($10^{13}/\text{cm}^3$). Les batonnets atteignent une épaisseur de $1000 \text{ \AA}$ et des taches de BRAGG apparaissent sur les clichés de diffraction révélant une structure c.f.c. avec un paramètre de $6,42 \text{ \AA}$ et la relation d'orientation suivante par rapport à la matrice :

$$\langle 110 \rangle_{\text{batonnet}} // \langle 100 \rangle_{\text{Al}}$$

Puisque le paramètre déterminé est très semblable à celui du précipité stable ($6,32 \text{ \AA}$), il n'est pas évident que ces batonnets soient une phase différente de β . Pourtant l'aspect morphologique est différent puisqu'à plus haute température (par exemple après 3h à 260°C) THOMAS observe le développement de plaquettes issues de la croissance des batonnets selon une direction normale à leur axe. Les taches de diffraction révèlent alors la structure du précipité stable et les orientations indiquées auparavant.

THOMAS remarque de plus que toutes les phases observées sont réparties de façon homogène dans le cristal, les "précipités" n'ayant aucune corrélation avec les dislocations (toutefois quelques précipités très fins sont observés dans les joints de grains, il s'agit éventuellement de silicium pur).

* * *

La comparaison de ces quelques travaux montre qu'il est difficile d'interpréter les résultats concernant les mécanismes de précipitation des alliages Al-Mg₂Si. Il n'y a que très peu de points communs entre les différentes études, tant en ce qui concerne la nature des précipités successifs que leur domaine d'existence.

Si l'on essaye de résumer les résultats, un ordre plus ou moins qualitatif peut être établi dans la séquence des étapes de décomposition de la solution solide sursaturée :

- Le premier produit de précipitation est caractérisé par la formation de zones de GUINIER-PRESTON filiformes parallèles aux directions $\langle 100 \rangle$ de la matrice. La structure interne de ces zones est peu ordonnée et un grand nombre de lacunes y est éventuellement intégré.
- La deuxième étape se traduit par l'évolution et l'organisation interne des zones où apparaît une périodicité longitudinale et transversale tandis que s'éliminent les lacunes initialement présentes.
- La troisième étape éventuelle est relative à un précipité intermédiaire

qui n'est pas identifié avec certitude, et qui pourrait ne se former que dans les alliages à forte teneur en Mg_2Si .

- La dernière étape enfin, comprend le précipité stable β (Mg_2Si) lequel est observé par tous les auteurs.

2.4. EVOLUTION DES PROPRIETES MECANIQUES DES ALLIAGES $Al-Mg_2Si$

Dans le cas des alliages $Al-Mg_2Si$, LUTTS (50) (51) a suivi l'évolution de la dureté au cours des revenus isothermes parallèlement aux déterminations de structure par rayons X. Ses courbes déterminées entre 135 et 300°C sur un alliage à 0,7% de Mg_2Si sont du type A ou B bien que les déterminations structurales indiquent la précipitation successive de zones de GUINIER-PRESTON puis du précipité stable β . L'allure des courbes de dureté ne correspond donc pas au schéma général indiqué plus haut. D'après LUTTS ce sont les zones qui provoquent le durcissement jusqu'au maximum et c'est l'apparition des précipités qui cause ensuite l'adoucissement.

Dans le travail plus récent de MURAKAMI (26) les courbes de propriétés mécaniques (limite élastique conventionnelle à 0,2%) ont une allure très différente selon les conditions de traitement. Par exemple pour un alliage à 1,0% de Mg_2Si , les courbes de $\sigma_{0,2}$ montrent après une trempe à -20°C ($CaCl_2$) un durcissement du type A ("à froid") lors de vieillissements jusqu'à 40°C et du type C ("mixte") entre 80°C et 260°C. Par contre lorsque le traitement de trempe est effectué par trempe étagée, l'allure des courbes passe directement du type A au type B sans durcissement "mixte".

Il existe donc d'une part pour le même alliage une grande différence dans l'évolution des propriétés mécaniques selon le mode de trempe (trempe à -20°C ou trempe étagée) et d'autre part des divergences dans l'interprétation des résultats par rapport aux connaissances classiques.

2.5. EVOLUTION DE LA RESISTIVITE DES ALLIAGES $Al-Mg_2Si$

Dans le cas des alliages $Al-Mg_2Si$, FEDERIGHI (53, 54) a étudié l'évolution de la résistivité et a trouvé une très nette transition entre la réaction rapide et la réaction lente. A température ambiante cette tran-

sition a lieu au bout de 3 heures, et durant la réaction lente le maximum de résistivité n'est jamais atteint (même pas pour des temps de 10^5 min). FEDERIGHI croit au modèle de piégeage des lacunes dans les zones et interprète les résultats par une interaction relativement forte entre les lacunes et les zones de GUINIER-PRESTON.

Ces résultats furent confirmés par MURAKAMI (26) sur trois alliages à différentes teneurs en Mg_2Si (0,5 - 1,0 - 1,5%). De plus, MURAKAMI mesura l'évolution de la résistivité à des températures plus élevées ne donnant plus du tout lieu à une augmentation de la résistivité. Au contraire, à partir d'une certaine température de traitement il observe une chute initiale très rapide de $\Delta\rho$ puis une décroissance relativement lente et progressive jusqu'à une valeur correspondant à l'état survieilli. Aucune interprétation de ce phénomène ne fut donnée par MURAKAMI.

3. BUTS DE L'ETUDE ENTREPRISE

Nous avons vu auparavant que la détermination des étapes de précipitation par les rayons X et par la microscopie électronique est encore incertaine et que des divergences existent entre les résultats des différents auteurs. Ces divergences sont dues à la fois aux difficultés expérimentales inhérentes à cette catégorie d'alliages (pouvoir diffractant pratiquement identique de Mg, Al et Si) et au fait que les auteurs ont utilisé des alliages dont les teneurs en Mg_2Si sont assez variées.

Mais il convient d'insister sur une remarque qui nous paraît très importante : lors des études antérieures, les conditions de trempe, l'attente à l'ambiante après trempe et la montée en température pour le revenu sont souvent mal contrôlées. Nous pensons que ces raisons pourraient peut-être expliquer certaines des contradictions rencontrées. En effet, il est connu que la vitesse et le mode de trempe (trempe étagée par exemple) peuvent avoir une grande influence sur la cinétique de formation et la température d'appa-

rition des zones de GUINIER-PRESTON ainsi que sur la précipitation ultérieure. Ce sont alors essentiellement les lacunes et les dislocations qui agissent comme facteurs déterminants.

En ce qui concerne les lacunes, la vitesse de trempe conditionne à la fois le nombre et l'état des lacunes en sursaturation. Durant les revenus ultérieurs, ce sont les processus de rassemblement ou d'élimination des lacunes qui orientent les premiers déplacements des atomes de soluté. Les études de DESORBO (55) et de KIMURA (56) sur la cinétique de formation des zones de GUINIER-PRESTON en fonction du mode de trempe ainsi que ceux de PASHLEY (57) concernant l'influence du mode de trempe sur la température de formation des zones démontrent bien ces effets.

En ce qui concerne les dislocations, on peut dire que le mode de trempe influe sur leur nombre et leur répartition. Puisqu'on sait que dans certaines conditions, les précipités peuvent germer préférentiellement sur les dislocations (57, 58) (précipitation hétérogène), le nombre et la répartition des précipités dépendent donc de la distribution des dislocations qui elle, varie selon les conditions de trempe.

Ces considérations nous ont amené à étudier en premier lieu, et de façon détaillée, l'influence des défauts de structure sur les modes de précipitation dans le cas des alliages Al-Mg₂Si.

Par ailleurs, dans le cas particulier des traitements thermiques avec attente à l'ambiante entre trempe et revenu, la nucléation des précipités hétérogènes ou homogènes est particulièrement importante, et l'étude de la précipitation sur les dislocations ou sur les rassemblements d'atomes formés au cours de l'attente à l'ambiante, a fait l'objet de nombreux travaux. Ce sont notamment PASHLEY (59, 60), ADENIS (61, 62, 63), MURAKAMI (26) et NICHOLSON (64, 65) qui ont étudié ces phénomènes.

D'une façon très schématique disons seulement que, dans le cas général, l'attente à l'ambiante entre trempe et revenu affine considérablement la précipitation et peut même la modifier radicalement (d'un faciès hétérogène sans attente on passe à un faciès homogène avec attente), ce qui

accroît les caractéristiques mécaniques finales. Cependant pour les alliages Al-Mg-Si à assez forte teneur en Mg et Si, l'attente est néfaste et conduit à une précipitation plus grossière avec des propriétés mécaniques inférieures. Dans ces alliages, le seul critère de précipitation homogène ou hétérogène n'est pas suffisant pour comprendre les mécanismes réels et des hypothèses basées sur le rayon critique et sur la stabilité des zones de GUINIER-PRESTON formées à l'ambiante ont été avancées (60, 63, 65).

Dans la deuxième partie de notre travail, nous essayerons donc de discuter l'influence des rassemblements initiaux d'atomes de soluté sur la précipitation ultérieure et d'étudier leur stabilité lors des essais de réversion.

CHAPITRE II - METHODES EXPERIMENTALES

1. ALLIAGES EMPLOYES

Les alliages utilisés sont trois alliages synthétiques élaborés à partir de métaux assez purs.

Dans les trois alliages, les éléments d'addition principaux Mg et Si sont ajoutés de façon à obtenir la composition stoechiométrique Mg_2Si , soit un rapport $Mg/Si = 1,73$ (en poids).

Les analyses sont les suivantes :

Type	Mg	Si	Fe	Cu	Mn	Mg_2Si
A	0,37%	0,20%	0,6ppm	0,8ppm	0,2ppm	0,60%
B*	0,51%	0,29%	0,6ppm	0,6ppm	0,4ppm	0,8%
C	0,78%	0,46%	0,6ppm	0,8ppm	10ppm	1,25%

Les alliages sont élaborés par coulée continue, les billettes de 100 mm de diamètre et 1000 mm de long sont ensuite homogénéisées pendant 24 h à 560°C, puis fraisés jusqu'à un diamètre de 78 mm et filés à la presse sous forme de larges de 10 x 20 mm ou de fils de 5 mm de diamètre.

Les ébauches obtenues sont alors :

- soit laminées sous forme de tôle de 3 mm, 1,7 mm ou de 0,2 mm d'épaisseur (le laminage est effectué de façon croisée à 90° et 45° afin d'éviter une trop forte texture en D),

- soit tréfilées pour obtenir un fil de 1 mm de diamètre.

* Notre étude a porté essentiellement sur l'alliage B à 0,8% Mg_2Si , les alliages A et C n'ayant servi que pour obtenir quelques résultats complémentaires.

2. EPROUVETTES UTILISEES

Les éprouvettes de traction utilisées sont des microéprouvettes estampées dans les tôles de 1,7 mm, leur partie utile mesure 20 mm de long sur 3 mm de large. La macrographie d'une telle éprouvette (de l'alliage B) est représentée sur la photo de la fig. (6), l'attaque macrographique révèle bien la taille du grain qui est de l'ordre de 1 mm^2 .

Quant aux éprouvettes destinées aux mesures de résistivité, elles sont constituées par un bobinage de fil de 1 mm de diamètre comportant une dizaine de spires environ, la longueur du fil étant 500 mm. Les deux bouts du fil sont aplatis par laminage pour permettre leur soudure par points sur les fils d'arrivée de courant et les prises de potentiel. Une photo du bobinage monté sur les arrivées de courant est représentée sur la figure (7). Une attaque macrographique montre la taille moyenne du grain des fils (fig. 8).

Les échantillons utilisés pour la microscopie électronique, également estampés, sont des disques de 3 mm de diamètre prélevés dans les tôles de 0,2 mm.

3. TRAITEMENTS THERMIQUES REALISES

3.1. TRAITEMENTS DE MISE EN SOLUTION

Les traitements de mise en solution ont tous été effectués à 600°C dans un four à air, leur durée a été suffisamment réduite pour que l'évaporation d'une quantité appréciable de magnésium ne soit pas à craindre.

En effet, des essais préliminaires de mesure de résistivité ont montré qu'en répétant sur un même échantillon les traitements de mise en solution (recuits durant 20 minutes à 600°C) suivis d'une trempe à l'eau, la valeur de la résistivité mesurée à l'état trempé diminue continuellement (on trouve une baisse de $5 \text{ m}\mu\Omega \times \text{cm}$ environ par cycle). Cette diminution

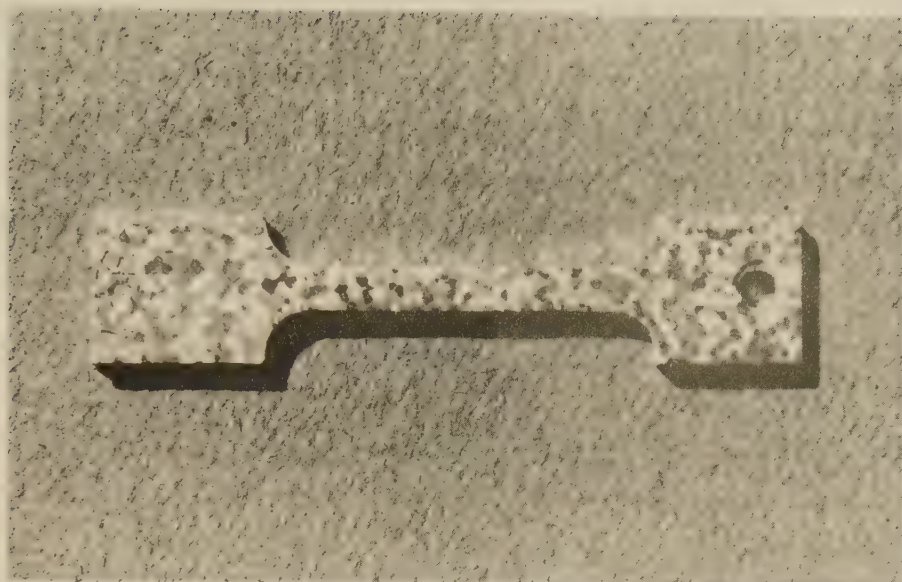


Fig. 6 - Macrographie d'une éprouvette utilisée pour les essais de traction (x 2).

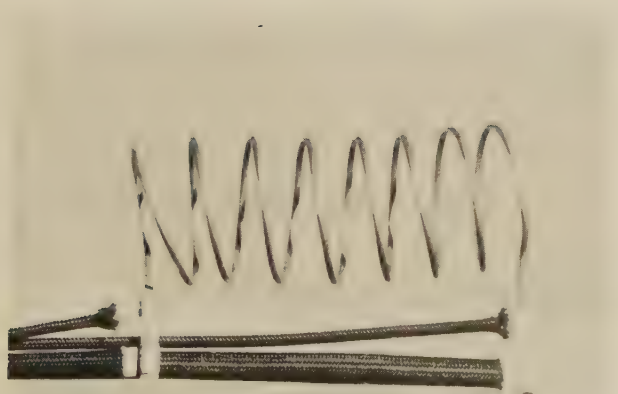


Fig. 7 - Photographie du bobinage de fil destiné aux mesures de résistivité tel qu'il est monté par soudage aux fils d'arrivée du courant et aux prises de potentiel.

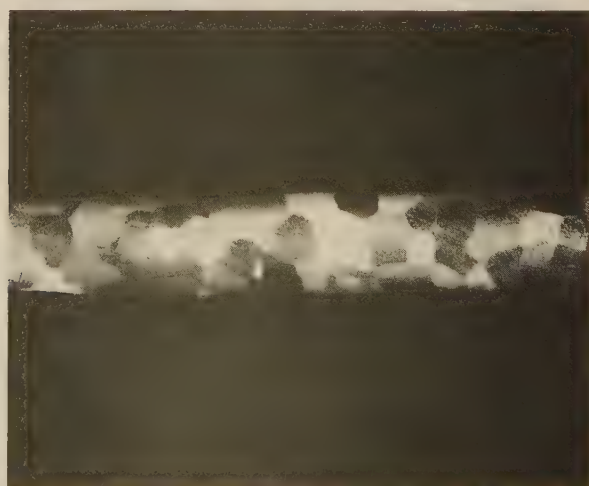


Fig. 8 - Macrographie du fil utilisé pour les mesures de résistivité (x 10).

de ρ trempé pouvant être due à l'évaporation du magnésium, nous avons entrepris des essais de recuit prolongé à 600°C sur les fils de résistivité et sur les tôles de 0,2 mm (utilisées pour les échantillons de microscopie électronique). Les résultats d'analyses chimiques sur ces échantillons avant et après un recuit de 2 heures à 600°C sont les suivants :

Alliage C (1,20% Mg_2Si)	Avant		Après	
	Mg	Si	Mg	Si
fils de 1 mm $\varnothing$	0.78	0.46	0.65	0.46
tôles de 0,2 mm	0.75*	0.46	0.40	0.46

Ce qui confirme l'importance de l'évaporation du magnésium lors des recuits prolongés à 600°C.

Pour cette raison, les temps de recuit choisis sont de 15 minutes pour les éprouvettes assez massives (traction et résistivité) et de l'ordre de 5 minutes seulement pour les échantillons de 0,2 mm d'épaisseur destinés à être ensuite amincis et observés au microscope électronique.

3.2. TRAITEMENTS DE TREMPÉ

Ceux-ci sont réalisés par immersion rapide des échantillons qui tombent en chute libre :

- dans de l'eau à 20°C (trempe rapide),
- dans de l'éthanol à 20°C (trempe lente),
- dans du glycérol ou un sel fondu maintenu à différentes

* Déjà pendant les recuits de recristallisation, il y a eu une petite perte de magnésium.

températures (trempe étagée).

Le temps de maintien dans le bain de trempe a toujours été fixé à 5 secondes, ce temps ayant été choisi en fonction du temps nécessaire pour le refroidissement dans l'alcool. L'expérience a d'ailleurs montré qu'à 20°C aucune modification importante de l'alliage trempé n'est décelable pour des temps inférieurs à 30 secondes.

Dans le cas des trempes étagées, le temps minimal de maintien dans le bain est 12 secondes (exceptionnellement pour quelques essais 5 secondes).

3.3. TRAITEMENTS DE VIEILLISSEMENT

Ils sont tous effectués dans des bains thermostatés, les fluides utilisés étant :

- le kérosène de 20 à 40°C,
- le glycérol entre 50 et 150°C,
- un bain de sel (nitrite-nitrate) pour les températures supérieures à 150°C.

La régulation des bains permet une précision de maintien en température de $\pm 0,5^{\circ}\text{C}$ pour les bains de kérosène et de glycérol et de $\pm 2^{\circ}\text{C}$ pour le bain de sel.

Le retour à la température ambiante à la fin du vieillissement est réalisé par trempe dans un bain d'eau (lorsque la température du revenu est inférieure à 250°C), par trempe à l'eau ou à l'alcool (pour les échantillons revenus à une température supérieure). Dans le cas des essais de résistivité, l'arrêt du vieillissement est obtenu par l'immersion de l'échantillon dans l'azote liquide.

4. ESSAIS REALISES

4.1. ESSAIS DE TRACTION

Bien que les échantillons aient tous été tractionnés jusqu'à la rupture, seule la limite élastique conventionnelle à 0,2% ($\sigma_{0,2}$) a été prise en considération puisque c'est une caractéristique très sensible aux modifications structurales de ces alliages. La vitesse de traction choisie est égale à 2% par minute et la température des essais est la température ambiante.

La précision absolue des mesures est de l'ordre de $\pm 0,15 \text{ daN/mm}^2$; les valeurs de $\sigma_{0,2}$ mesurées allant de 2 daN/mm^2 à 20 daN/mm^2 , l'erreur relative se situe entre 0,75 et 7,5%.

Nous pensons que cette dispersion assez importante des résultats est principalement due à la taille de grain relativement grande que possèdent les éprouvettes ; il n'y a parfois que 2 à 3 grains par section d'éprouvette, ce qui permet des déformations hétérogènes de quelques grains favorablement orientés. Une autre source d'erreur, que nous rencontrerons également dans les essais de résistivité, peut être due au temps de mise en solution, que nous avons choisi très court afin d'éviter l'évaporation du magnésium. Une mise en solution et une homogénéisation imparfaites peuvent en être les conséquences.

4.2. MESURES DE RESISTIVITE

La méthode de mesure de la résistivité utilisée est la méthode potentiométrique, qui consiste à opposer à la différence de potentiel aux bornes de l'échantillon, un potentiel égal. La différence de potentiel aux bornes est créée par le passage d'un courant continu d'intensité donnée dans l'échantillon.

Par rapport à un montage en pont Thompson, cette méthode présente

l'énorme avantage d'éliminer l'influence de la résistance des fils de prise de potentiel, puisqu'à l'équilibre le courant qui traverse ces fils est nul. Par contre, on n'élimine pas les forces électromotrices d'origine thermoélectriques, mais il est possible de les mesurer en renversant le sens du courant dans l'échantillon.

Pour obtenir une bonne précision sur les mesures de résistivité, il faut éliminer au maximum la composante thermique afin de donner une grande importance à la composante due aux défauts. Cela implique que la résistivité soit mesurée à une température aussi basse que possible : pour des raisons de commodité nous avons adopté l'azote liquide (-196°C).

Le montage d'un tel circuit de mesures, qui travaille dans la gamme des fractions de microvolts avec une précision relative de 10^{-5} , nécessite beaucoup de précautions expérimentales afin d'éliminer toute force électromotrice parasite gênante :

- a) Chaque appareil doit être alimenté de façon indépendante, c'est-à-dire qu'un seul des appareils peut être branché sur le secteur, les autres étant alimentés par des batteries indépendantes : en effet, il peut se produire des "boucles de phases", chaque appareil risquant d'influencer les autres par l'intermédiaire du secteur.
- b) Il faut éliminer toute influence de champs électriques ou magnétiques sur le circuit de mesure ce qui implique que tous les fils de liaison soient blindés, le blindage étant relié à la terre.
- c) Il faut à tout prix éviter les "boucles de terre" dont l'effet est identique à celui des "boucles de phases" : en cas de "boucles de terre" cette boucle agit comme une antenne et capte toutes les hautes fréquences émises par d'autres appareils, ce qui empêche toute mesure.
- d) Tout le circuit de mesure doit être réalisé en un métal unique

de façon à éviter l'apparition de f.é.m. d'origine thermique parasites. Au cas où l'emploi de deux métaux différents est nécessaire, la soudure entre ces métaux doit être ramenée dans l'azote liquide pour éliminer les f.é.m. d'origine thermique inévitables (par effet Thompson).

En conséquence, le montage utilisé comporte trois étages (fig. 9) :

1) Etage d'alimentation

L'alimentation des échantillons en courant est réalisée à l'aide d'une batterie de 12 V. Le courant est stabilisé par repiquage sur l'étage stabilisateur de courant continu d'une alimentation stabilisée 8 Volts, 2 Ampères Chauvin-Arnoult.

L'alimentation de l'étage stabilisateur est assurée par des piles et la stabilité du courant continu délivré est meilleure que 10^{-4} pour un courant de 1 Ampère.

A sa sortie de l'étage de stabilisation, le courant d'alimentation passe dans un inverseur qui permet de changer à volonté le sens du courant dans les échantillons.

Deux résistances étalons de 1/100 et 1/1000 d'ohm permettent de connaître, avec une précision supérieure à un cent-millième, la valeur exacte du courant, ce qui permet de connaître ultérieurement la valeur absolue exacte de la variation de résistivité apportée par les traitements thermiques.

2) Etage azote liquide

Cet étage comporte les échantillons, leurs prises de potentiel en fils d'aluminium super raffiné, et les soudures de ces fils de prise de potentiel sur les fils de cuivre du circuit de mesure.

3) Etage de mesure

Les fils de prise de potentiel en cuivre aboutissent à un commutateur sans f.é.m. thermique en cuivre pur, lequel permet d'injecter alternativement dans le potentiomètre de mesure les potentiels des résistances étalons et celui de l'échantillon étudié.

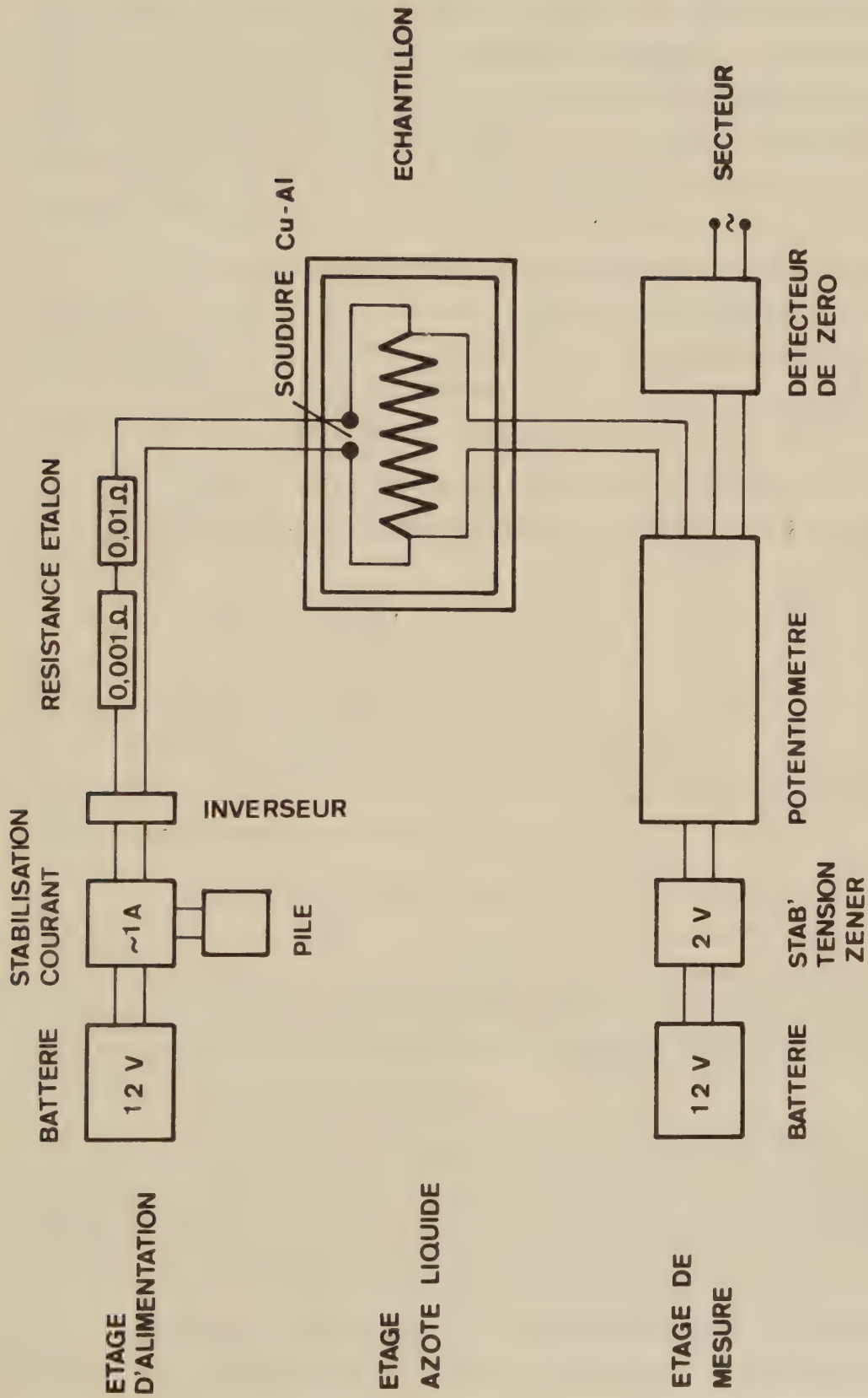


Fig. 9 - Schéma de principe de l'appareil de mesure de la résistivité électrique.

Le potentiomètre de mesure est alimenté par un étage de stabilisation à diodes de Zener, permettant d'obtenir une régulation instantanée de l'ordre de 10^{-6} (et à 10^{-5} pour des temps prolongés). L'étalonnage en valeur absolue du potentiomètre se fait par référence à une pile étalon Weston saturée et l'équilibre du potentiomètre (du type Leeds et Northrup K5) est vérifié par un détecteur de 0 à forte impédance d'entrée, qui est en fait un microvoltmètre électronique KEITHLEY type 150 A.

Le potentiomètre et le microvoltmètre électronique sont de la même classe de précision : il est donc possible de détecter le centième de microvolt dans les conditions optimales, et la précision obtenue en moyenne est de l'ordre du dixième de microvolt, ce qui permet d'obtenir une précision relative sur la résistivité des échantillons de l'ordre de 10^{-5} .

Après la description de l'appareil, il convient de signaler que les résultats des mesures sont exprimés en terme de variation de la résistivité :

$$\Delta \rho = \rho_0 \frac{\Delta R}{R_0}$$

avec

R_0 = la résistance de l'échantillon trempé depuis 600°C ,

ΔR = la différence entre la résistance mesurée et R_0 ,

ρ_0 = la résistivité de l'alliage à l'état trempé (résistivité moyenne calculée d'après une série d'essais identiques).

Signalons que chaque essai a été réalisé sur un échantillon séparé puisqu'un deuxième traitement de mise en solution pendant 15 minutes à 600°C suivi d'une trempe ne reproduisait pas la même résistivité initiale, le deuxième ρ_0 étant légèrement inférieur à la valeur du premier essai. Cette baisse de résistivité peut être attribuée, ainsi que nous l'avons déjà dit, à une faible perte de magnésium.

Etant donné que chaque essai a dû être réalisé sur un échantillon séparé, les mesures absolues de la résistivité sont affectées par certains paramètres expérimentaux tels que les conditions de mise en solution et celles de trempe où la géométrie réelle de l'échantillon.

Ainsi la mesure de ρ_0 , (la résistivité de l'alliage après trempe) présente une dispersion de $\pm 1\%$ environ sur une série d'essais identiques.

Les mesures de la variation de la résistivité au cours d'un essai de vieillissement isotherme sont effectuées sur un seul échantillon. Après la mesure de ρ_0 à l'azote liquide, l'échantillon est porté rapidement à la température du vieillissement par immersion dans le bain thermostaté, maintenu pendant un temps déterminé, et replongé dans l'azote liquide. Ainsi, par des traitements cumulatifs, une série de points à temps croissant peut être déterminée.

La précision dans la détermination d'une courbe de vieillissement n'est donc pas affectée par la mesure de la géométrie de l'échantillon, ce ne sont que des erreurs de mesure de temps et de température au cours du traitement qui interviennent. Pour ces valeurs relatives, la précision peut être estimée comme étant assez bonne.

4.3. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

Les traitements thermiques de trempe et de vieillissement ont été effectués sur des rondelles estampées de 0,2 mm d'épaisseur. La vitesse de trempe jouant un rôle particulièrement important sur le vieillissement ultérieur, il est nécessaire que les conditions de refroidissement de ces très petits échantillons soient le plus possible voisines de celles des éprouvettes de traction. Dans ce but, et pour tous les traitements thermiques, les rondelles sont placées entre deux tôles d'aluminium de 0,8 mm d'épaisseur (figure 10), une faible oxydation préalable empêchant toute diffusion et tout soudage gênants.

Les rondelles sont ensuite amincies électrolytiquement par la méthode des jets, dont nous rappellerons sommairement le principe (figures 11, 12 a et b).

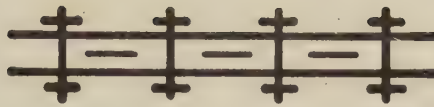
- Deux buses, positionnées à l'aplomb du centre de l'échantillon, dirigent des jets d'électrolyte sur les deux faces de la rondelle, laquelle est maintenue par un support en plastique ;

- Les buses en INOX servent de cathode et la rondelle, par l'intermédiaire d'une feuille d'aluminium, est en contact avec l'anode. Une attaque électrolytique est ainsi réalisée.

- L'électrolyte utilisé a la composition suivante :

- . 7 volumes d'alcool méthylique

tôle d'Al



échantillons

vis en INOX

Fig. 10 - Schéma du porte échantillon utilisé pour les traitements thermiques des rondelles destinées à être observées au microscope électronique après amincissement.

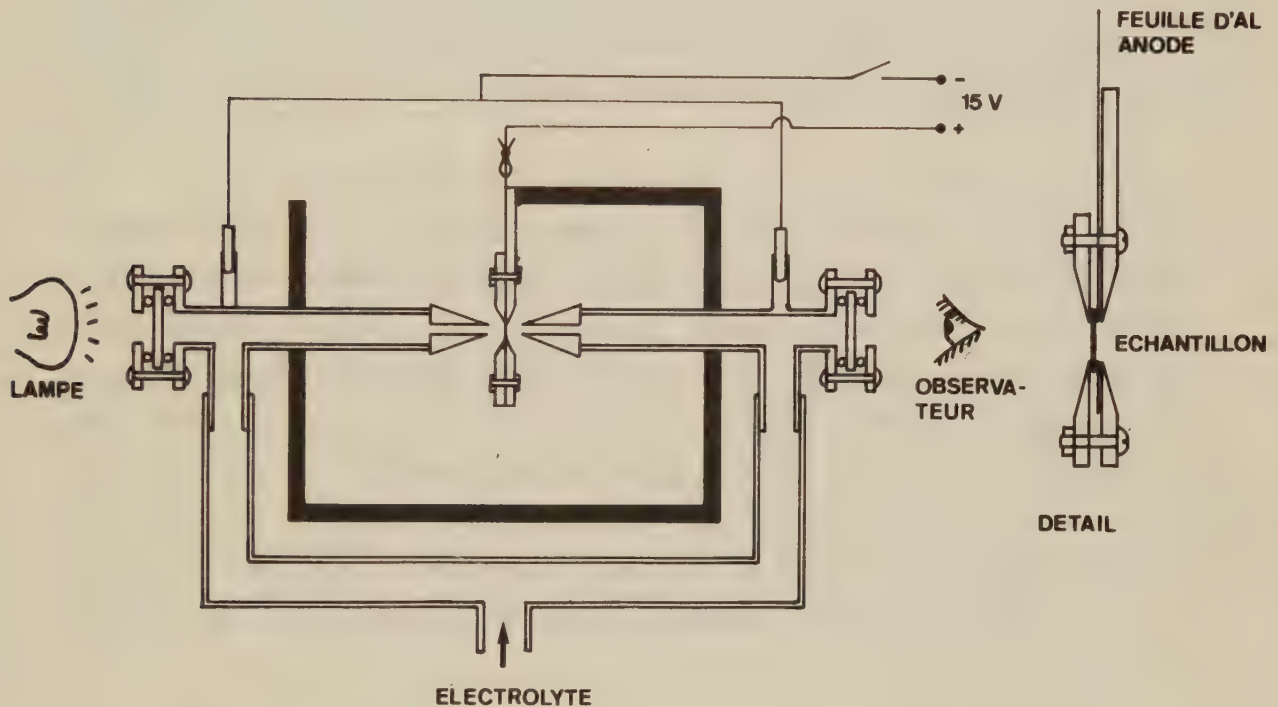


Fig. 11 - Schéma de principe de l'appareil d'amincissement par la méthode des "jets".

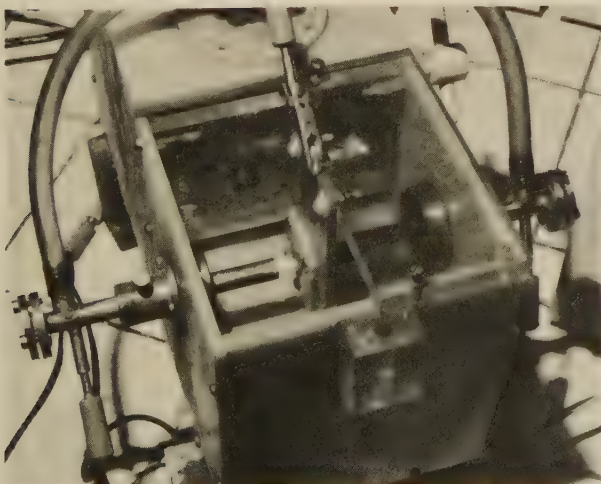


Fig. 12a. - Photographie de l'appareil d'amincissement.

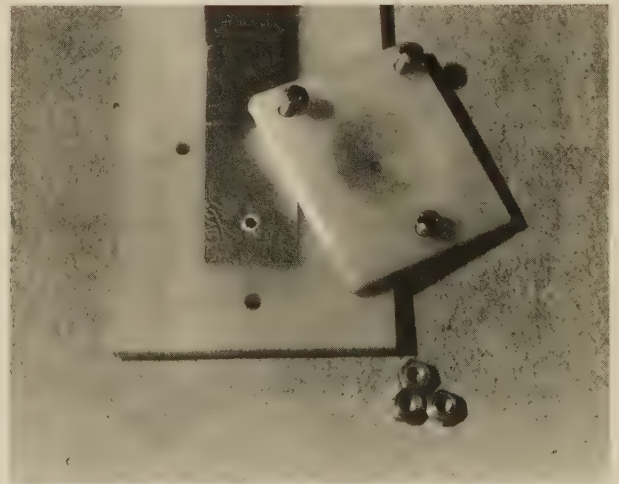


Fig. 12b. - Photographie du porte-échantillon.

- . 2 volumes d'acide perchlorique $d = 1.615$
- . 2 volumes de glycérine bidistillée.

La température du bain de polissage est la température ambiante et la tension à vide est de 15 V.

Par suite de phénomènes hydrodynamiques, le polissage électrolytique produit de petites cuvettes sur les deux faces de la rondelle. A l'instant où les deux cuvettes se rejoignent (ce qui demande 2 à 4 minutes) elles forment un petit trou et l'attaque électrolytique est immédiatement arrêtée.

La perception de l'apparition du trou est rendue possible par l'observation de la rondelle à travers une petite fenêtre placée à l'extrémité d'une des buses. Derrière la buse symétriquement opposée, également pourvue d'une fenêtre, une lampe assez forte est installée et la lumière de cette lampe, canalisée dans les jets, est facilement observée dès la formation d'un microtrou. Il est très important d'arrêter l'attaque le plus vite possible dès l'apparition du trou, puisque les bords s'attaquent alors très vite, les plages les plus minces étant rapidement dissoutes. La rondelle est ensuite retirée, rincée puis observée au microscope optique avant d'être examinée au microscope électronique (appareil PHILIPS EM 300).

CHAPITRE III - RESULTATS OBTENUS

Les grandes lignes de cette étude concernent l'évolution de la précipitation au cours de vieillissements isothermes effectués sur l'alliage B à 0,8% de Mg_2Si . L'état initial de l'alliage pouvant conditionner le vieillissement ultérieur, nous avons séparé les essais en deux classes, selon cet état initial :

- la première classe est la plus importante ; elle est caractérisée par des vieillissements à partir de solutions solides homogènes et sursaturées ; les variables, à part la température, sont alors essentiellement le nombre et la distribution des lacunes et des dislocations.
- la deuxième classe représente des vieillissements sur des échantillons où le soluté est plus ou moins regroupé sous forme d'amas ("clusters") ou de zones de GUINIER-PRESTON par suite d'une prématuration à température ambiante. Dans ce cas le nombre et l'état initial des lacunes et des dislocations sont des paramètres qu'il faut aussi considérer.

La deuxième catégorie d'essais, pour lesquels l'état initial avant le vieillissement est obtenu par un prévieillissement à température ambiante, concerne en fait des vieillissements avec double traitement thermique. Cependant, nous verrons par la suite que, dans certains cas, le vieillissement à partir d'un état prévieilli à basse température peut conduire à une réversion partielle ou totale des propriétés mécaniques, et nous classerons ce type particulier d'essais dans un paragraphe séparé.

Nous diviserons donc les essais en trois séries :

- 1) - les vieillissements isothermes directs, c'est-à-dire les vieillissements effectués aussitôt après la trempe depuis les hautes températures (schéma A, Fig. 13).

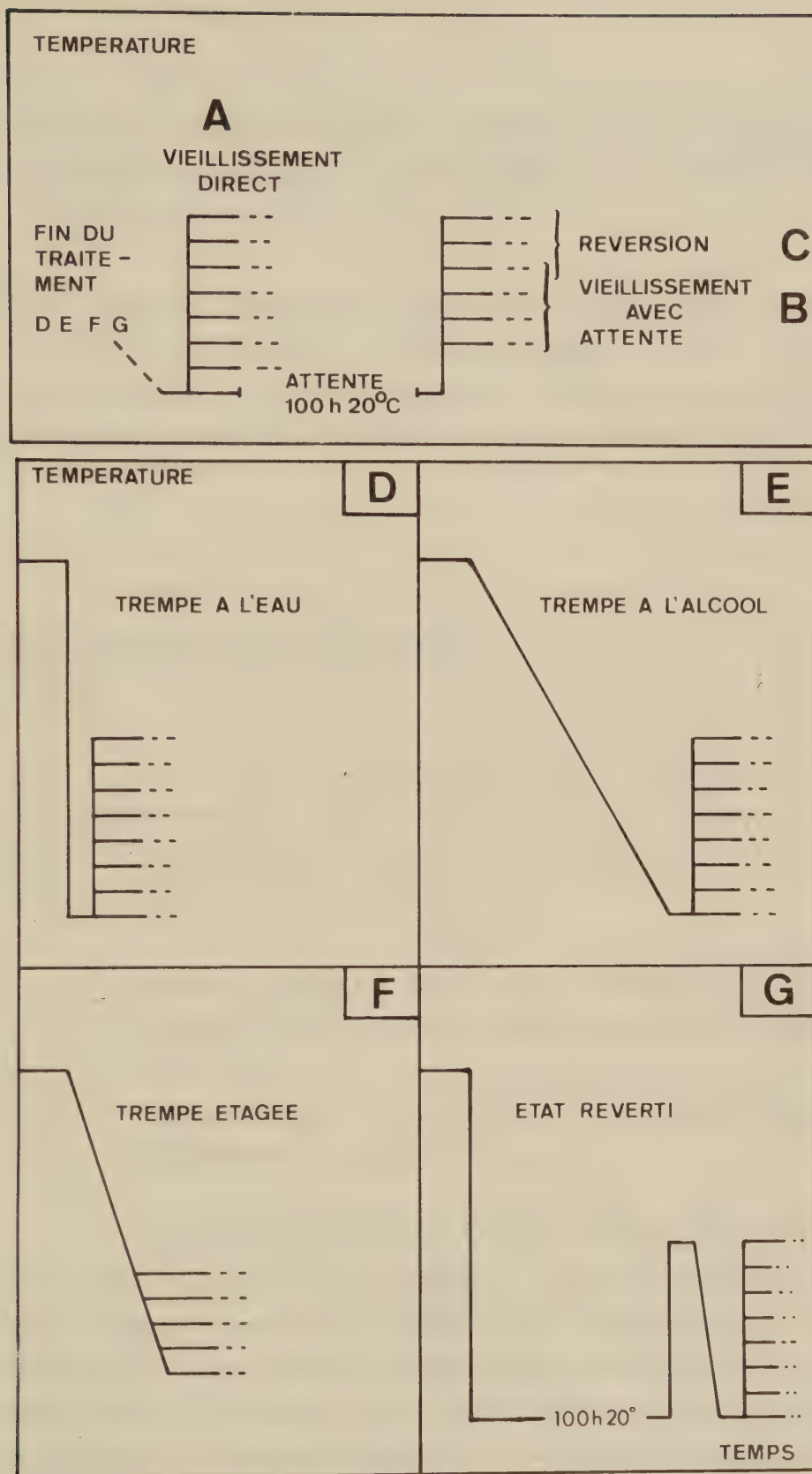


Fig. 13 - Schémas des traitements thermiques réalisés.

- 2) - Les vieillissements isothermes réalisés sur des états prévieillis à température ambiante ("vieillissements avec attente à l'ambiante") (schéma B, Fig. 13).
- 3) - Les essais de "réversion" c'est-à-dire des traitements réalisés sur des états prévieillis à l'ambiante (schéma C, Fig. 13) à des températures donnant lieu à une disparition totale ou partielle des produits de décomposition de la solution solide issus du prévieillissement.

1. VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS

Afin de faire varier le nombre et la répartition des lacunes et des dislocations dans l'état initial sitôt après trempe, trois modes de refroidissement ont été choisis qui tous permettent à l'alliage d'être à l'état de solution solide sursaturée :

- trempe "rapide" à l'eau à 20°C (schéma D, Fig. 13)
- trempe "lente" à l'alcool éthylique à 20°C (schéma E, Fig. 13)
- trempe étagée (au bain de sel ou au glycérol selon la température) (schéma F, Fig. 13).

Un quatrième état initial a par ailleurs été utilisé. Bien que résultant d'un traitement plus complexe, nous le classons avec les traitements de trempe puisqu'il conduit également à une solution solide sitôt avant le vieillissement. Cette solution solide est ici obtenue par la réversion totale d'un état vieilli 100 heures à 20°C après trempe à l'eau. Nous verrons dans un paragraphe ultérieur quels sont les critères qui permettent de définir l'état réverti et, pour l'instant, il suffit de préciser que la réversion a été réalisée par un traitement de 4 secondes à 300°C suivi d'une trempe à l'alcool (schéma G, Fig. 13).

Les vieillissements isothermes sont donc conduits à partir de ces quatre états initiaux, et leur évolution est suivie par des mesures de la limite élastique $\sigma_{0,2}^*$ et de la résistivité, tandis que la structure est observée au microscope électronique.

1.1. VARIATION DE LA LIMITE ELASTIQUE

Les figures 14 à 17 montrent, en fonction du logarithme du temps, l'évolution de la limite élastique conventionnelle ($\sigma_{0,2}$) mesurée au cours des vieillissements isothermes à différentes températures T_v ($20 < T_v < 300^\circ\text{C}$), et ceci pour les quatre états initiaux considérés.

Les caractéristiques principales de ces quatre séries de courbes de "durcissement" sont les suivantes :

1.1.1. Limite élastique des états initiaux

Avant d'indiquer les valeurs de $\sigma_{0,2}$ juste avant le vieillissement, il faut préciser que celles-ci ne peuvent être déterminées que par extrapolation des courbes de vieillissement au temps $t = 0$, puisque le temps de monter l'éprouvette sur la machine de traction ne peut être inférieur à 30 secondes. Avec cette réserve, les valeurs extrapolées sont donc les suivantes :

- après trempe rapide à l'eau ($\sigma_{0,2}$)₀ = 2,50 daN/mm²

* Etant donné les faibles variations des propriétés mécaniques que nous avons besoin de mesurer dans certains cas, nous avons actuellement préféré déterminer la limite élastique conventionnelle à 0,2% par traction au lieu de mesurer la dureté, technique plus facile à mettre en oeuvre mais qui aurait fourni des résultats beaucoup moins précis.

Fig. 14 à 17 - Variation de la limite élastique $\sigma_{0,2}$ au cours de vieillissements isothermes à partir de divers états initiaux.

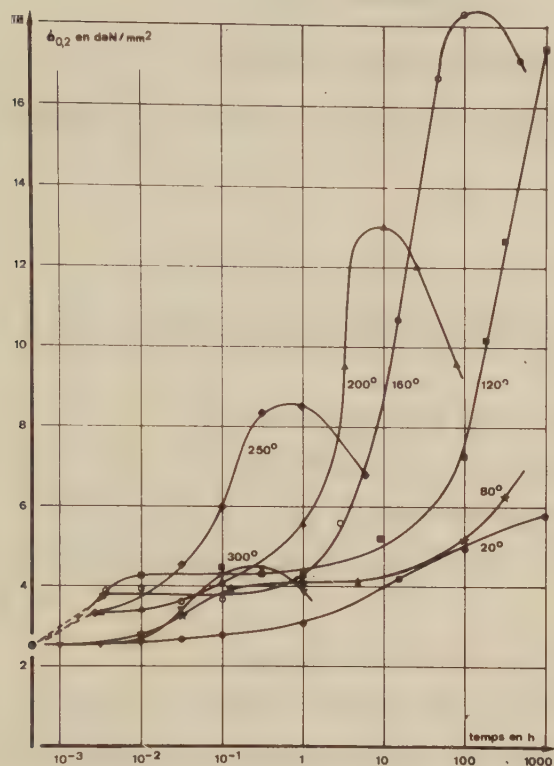


Fig. 14 - Etat trempé à l'eau.

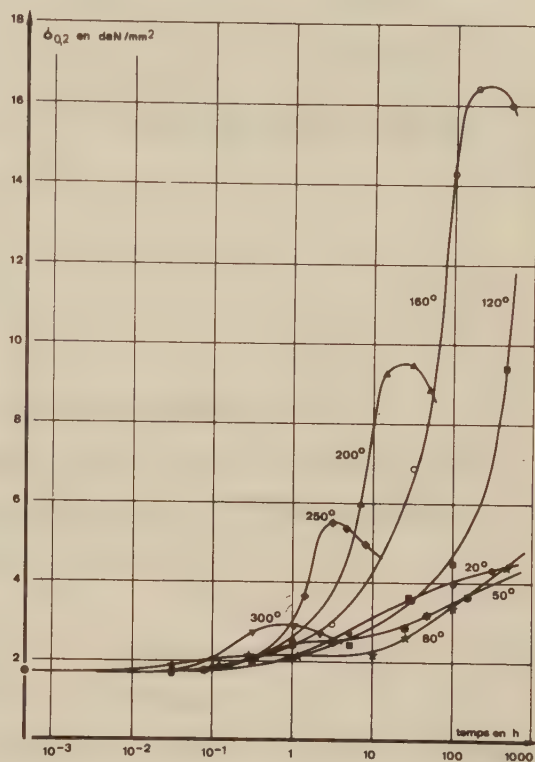


Fig. 15 - Etat trempé à l'alcool.

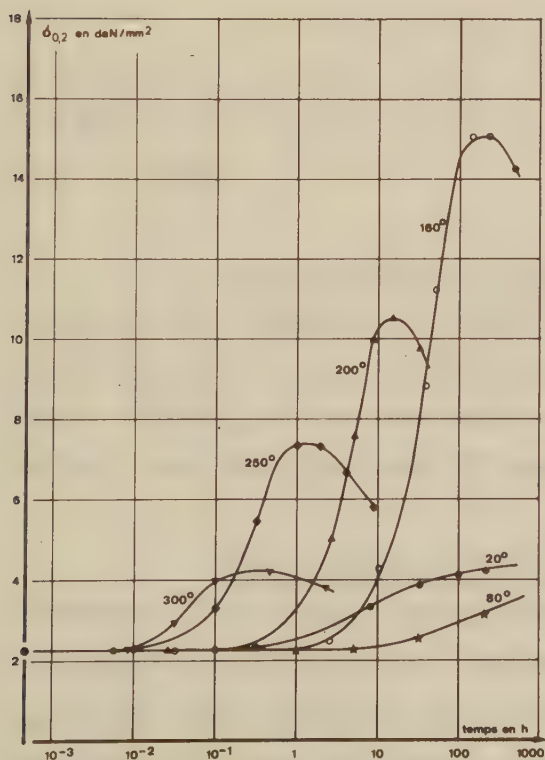


Fig. 16 - Etat réverti.

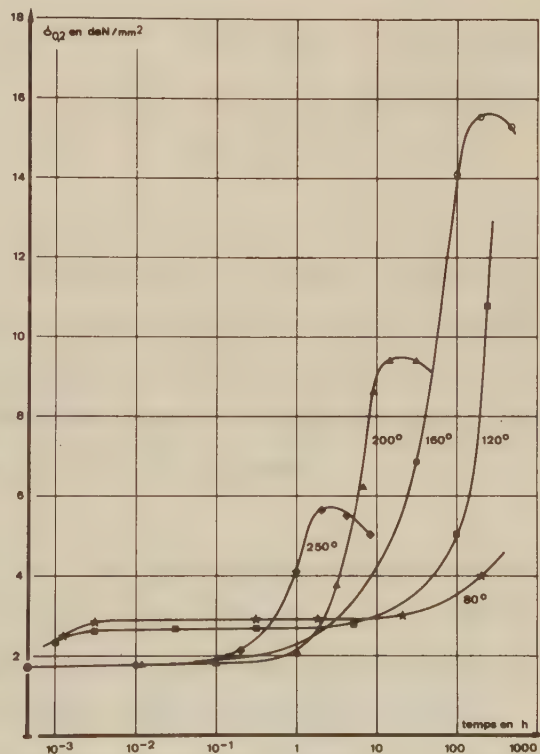


Fig. 17 - Etat obtenu par trempe étagée.

- après trempe lente à l'alcool $(\sigma_{0,2})_0 = 1,75 \text{ daN/mm}^2$
- après réversion $(\sigma_{0,2})_0 = 2,30 \text{ daN/mm}^2$
- après trempe étagée* $(\sigma_{0,2})_0 = 1,75 \text{ daN/mm}^2$

* (pour $T_v < 160^\circ\text{C}$, la valeur initiale de $\sigma_{0,2}$ n'est pas déterminable).

1.1.2. Evolution du "durcissement"

On note que les trois types de durcissement A, B, C, (cf. fig. 1) sont observés pour des températures très différentes selon l'état initial, mis à part le type correspondant au vieillissement à l'ambiante pour lequel seule la cinétique est modifiée.

- Le durcissement à l'ambiante se produit donc toujours selon le type de vieillissement "à froid" (cas A de la fig. 1), mais le durcissement est plus important et le temps d'incubation moins long après trempe à l'eau qu'après trempe à l'alcool, et dans le cas de l'état initial réverti, le durcissement est encore plus faible.

- Si la température est supérieure à l'ambiante, le durcissement peut encore se produire selon le type A ("à froid") pour les températures proches de 20°C ou alors selon le type "mixte" (C) ou "à chaud" (B, cf. fig. 1). Ainsi :

- Après trempe à l'eau (fig. 14) et pour T_v compris entre 80° et 250°C , le durcissement est "mixte" (type C) avec un palier vers 4 daN/mm^2 , palier qui devient aux températures supérieures à la fois moins élevé et plus court. A 300°C , il y a une nette transition du type C au type B (donc sans palier) avec alors un temps d'incubation de 30 à 40 secondes.

- Après trempe à l'alcool (fig. 15), seules les courbes de vieillissement à 50° et 80°C présentent un palier (type "mixte", C) de limite élastique faible ($2,5$ et $2,1 \text{ daN/mm}^2$ respectivement) s'étalant sur une longue durée. Ceci conduit à une limite élastique bien inférieure à celle mesurée à 20°C pour des durées comprises entre 10 et 500 heures. A partir

de 120°C, l'évolution est du type B ("à chaud") et ceci jusqu'à 300°C.

- Après réversion (fig. 16) seul le durcissement "à chaud" est observé, et ceci pour des températures de vieillissement comprises entre 80° et 300°C. Ici aussi, le durcissement observé à 80°C est très inférieur à celui à 20°C.

- Finalement, par trempe étagée (fig. 17) les résultats ne sont pas très évidents. La limite élastique initiale ne peut pas être définie de façon précise, puisque dans ce type de trempe, les temps courts ne sont pas très significatifs. Nous remarquerons seulement que, bien que le milieu de trempe soit le même entre 80° et 160°C (glycérol), la valeur initiale de $\sigma_{0,2}$ et celle correspondant au palier décroissent lorsque la température du vieillissement s'élève. Au-dessus de 160°C, les courbes de vieillissement partent toutes du même niveau et leur évolution est alors du type "à chaud".

Les valeurs de $\sigma_{0,2}$ correspondant aux maxima de durcissement obtenus au cours des différents vieillissements, ainsi que les temps nécessaires pour les atteindre, sont reportés dans le tableau I avec les valeurs de $\sigma_{0,2}$ des états initiaux et la caractérisation du type de durcissement, ce qui permet une comparaison plus facile des résultats.

1.2. VARIATION DE LA RESISTIVITE

Comme pour le cas des propriétés mécaniques en traction, l'évolution de la résistivité a été mesurée au cours de vieillissements isothermes effectués sur des solutions solides sursaturées. Vu la difficulté de détermination des valeurs initiales de la résistivité ρ_0 dans le cas des trempes étagées, laquelle serait affectée de trop d'incertitudes, nous avons étudié seulement l'évolution des 3 états initiaux :

- l'état trempé à l'eau,
- l'état trempé à l'alcool,
- l'état réverti.

Les courbes des figures 18 à 20 où la résistivité est portée soit en valeurs relatives $\Delta\rho$ (a) pour les basses T_V , soit en valeurs absolues

TABLEAU I

état initial	T_v	$(\sigma_{0,2})$ initial en daN/mm ²	type de durcissement	$(\sigma_{0,2})_{\max}$ daN/mm ²	t pour $(\sigma_{0,2})_{\max}$
trempé à l'eau	20°C	2,5	à froid A	-	-
	80°C	"	mixte C	-	-
	120°C	"	mixte C	-	-
	160°C	"	mixte C	18,5	100 h
	200°C	"	mixte C	13,0	10 h
	250°C	"	mixte C	8,75	30 mn
	300°C	"	à chaud B	4,5	20 mn
trempé à l'alcool	20°C	1,75	à froid A	-	-
	50°C	"	mixte C	-	-
	80°C	"	mixte C	-	-
	120°C	"	à chaud B	-	-
	160°C	"	à chaud B	16,5	300 h
	200°C	"	à chaud B	9,5	20 h
	250°C	"	à chaud B	5,5	3 h
	300°C	"	à chaud B	3,0	1 h
état réverti	20°C	2,3	à froid A	-	-
	80°C	"	à chaud B	-	-
	160°C	"	à chaud B	15,0	150 h
	200°C	"	à chaud B	10,5	16 h
	250°C	"	à chaud B	7,5	1 h
	300°C	"	à chaud B	4,2	20 mn
trempe étagée	80°C	2,5	mixte C	-	-
	120°C	2,5	mixte C	-	-
	160°C	1,75	à chaud B	15,75	250 h
	200°C	"	à chaud B	9,5	20 h
	250°C	"	à chaud B	5,75	2 h

(b) pour les T_V élevées*, en fonction du logarithme du temps amènent les remarques suivantes :

1.2.1. Résistivité des états initiaux

On constate que la trempe à l'eau conduit à la plus forte résistivité initiale, puisque l'on a :

$\rho_0 = 663 \text{ m } \mu\Omega \times \text{cm}$	après trempe à l'eau
$\rho_0 = 643 \text{ m } \mu\Omega \times \text{cm}$	après trempe à l'alcool
$\rho_0 = 643 \text{ m } \mu\Omega \times \text{cm}$	après réversion

1.2.2. Evolution de la résistivité

Au cours des vieillissements conduits à différentes températures comprises entre 20° et 300°C, on peut noter :

a) que les courbes de vieillissement à l'ambiante (fig. 18 a à 20 a) montrent pour les 3 états initiaux un accroissement régulier de la résistivité ; un maximum n'étant pas atteint, même pour des temps très prolongés. La cinétique d'évolution de la résistivité est comparable à celle de la limite élastique $\sigma_{0,2}$: la plus rapide correspond à l'état trempé à l'eau, la plus lente à l'état réverti,

b) que pour des températures de vieillissement T_V supérieures à l'ambiante, la variation de la résistivité dépend beaucoup de l'état initial :

- après trempe à l'eau et pour T_V compris entre 50 et 120°C, la

* Le choix des valeurs relatives $\Delta\rho$ aux basses températures est dicté par le fait que les variations de résistivité sont beaucoup plus faibles qu'aux hautes températures. D'autre part, les valeurs absolues sont calculées à partir des valeurs relatives et de la moyenne des ρ_0 mesurés pour chaque essai individuel (voir méthodes expérimentales, chapitre II, § 4.1.).

résistivité passe par un maximum (fig. 18 a). Si T_V est supérieur à 120°C, il n'existe plus de maximum. Au contraire (et c'est là un phénomène important) l'on constate, dès les premières secondes du traitement, une chute très rapide de la résistivité (fig. 18 b),

- à 160°C, cette chute est de l'ordre de - 10 m $\mu\Omega \times \text{cm}$,
- à 200, 250 et 300°C, l'extrapolation au temps 0 des valeurs obtenues pour 4, 12, 36 sec et 2 mn de vieillissement, donne comme taux de la chute - 20 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ pour les 3 températures.

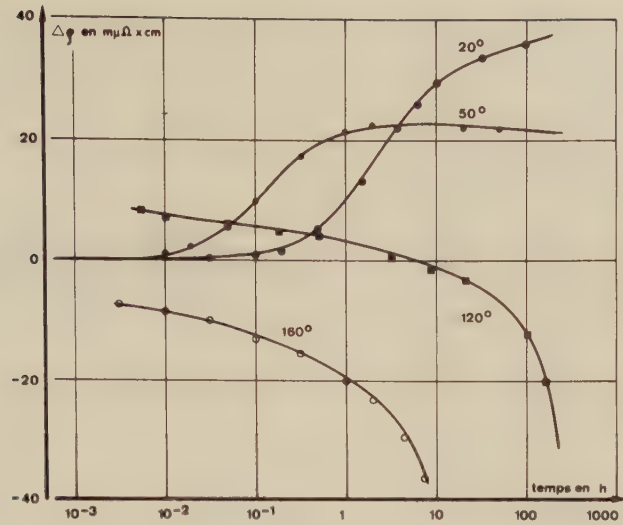
Il existe donc pour la chute initiale de la résistivité, une limite atteinte dès 200°C et qui n'est pas dépassée jusqu'à $T_V = 300^\circ\text{C}$. Après la chute brutale initiale, la décroissance de la résistivité est relativement régulière comme l'indique la figure 18 b.

Si l'on considère la loi de décroissance, il est possible de comparer, pour chaque température T_V (supérieure à 160°C), la cinétique de précipitation. Afin de caractériser cette cinétique, nous déterminons sur chaque courbe le temps t_x , pour lequel une diminution de ρ de - 150 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ est observée*. Ces valeurs de t_x pour des températures de vieillissement de 200, 250 et 300°C sont portées dans le tableau II.

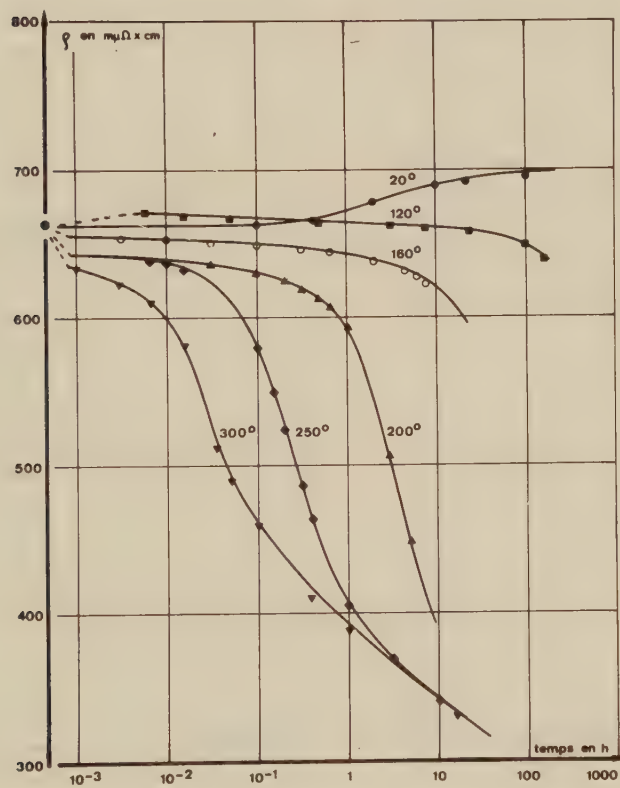
- après trempe à l'alcool, et pour des températures comprises entre 50 et 120°C, la résistivité passe par un maximum dont la valeur est beaucoup plus faible que celle constatée après trempe à l'eau. Ce maximum est pratiquement inexistant à 120°C et l'on peut estimer que la variation de la résistivité est alors quasi nulle durant plus de 24 heures (fig. 19 a).

Pour des températures T_V supérieures à 120°C, il n'existe pas de croissance initiale et l'on constate au contraire une légère chute.

* Le point à - 150 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ a été choisi arbitrairement, puisque les courbes obtenues correspondent assez mal à la formule appliquée généralement dans de tels cas de précipitation ($\alpha = 1 - \exp \left[- (t/t_0)^n \right]$, où α est la fraction de la quantité précipitable existant au temps t et où t_0 est le temps caractéristique pour lequel $\alpha = 0,63$).



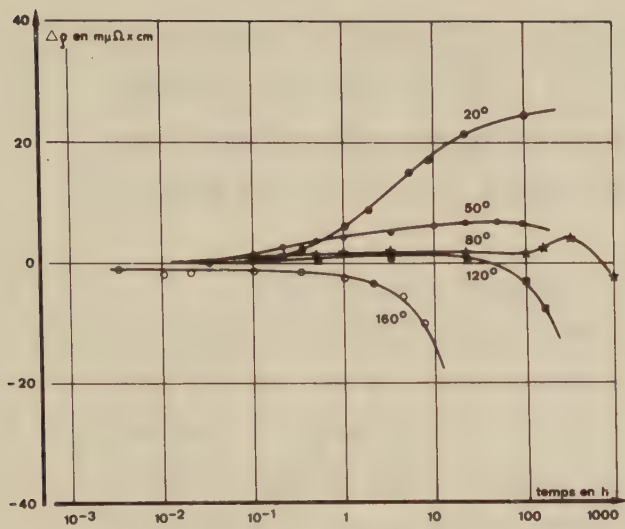
a)



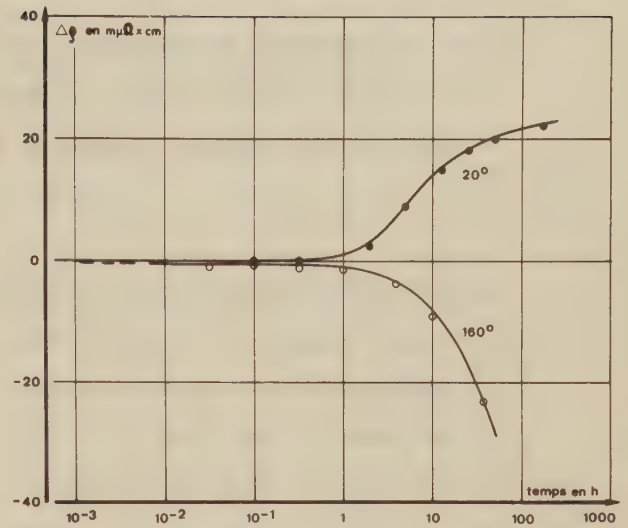
b)

Fig. 18 - Variation de la résistivité au cours de vieillissements isothermes à partir d'un état trempé à l'eau.

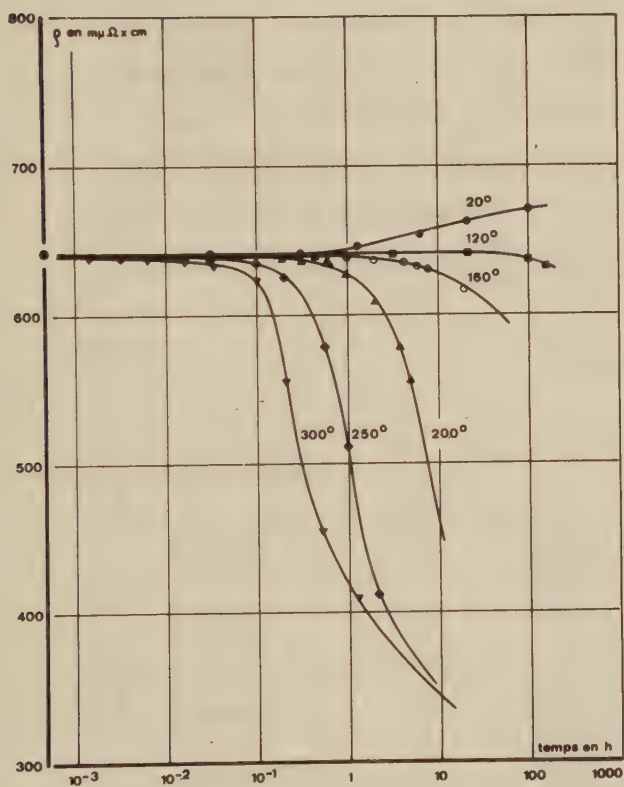
- a) Variation en valeurs relatives $\Delta\rho$
 b) Variation en valeurs absolues ρ



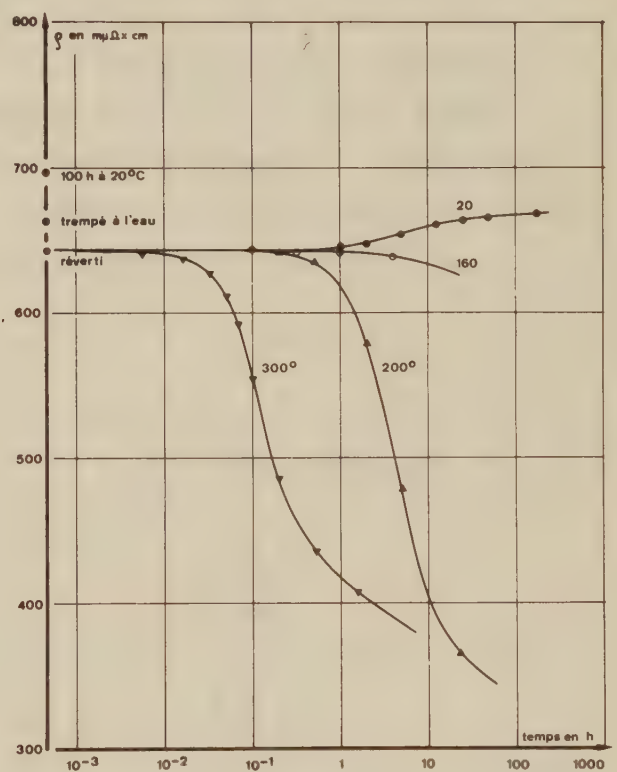
a)



a)



b)



b)

Fig. 19 - Variation de la résistivité au cours de vieillissements isothermes à partir d'un état trempé à l'alcool

Fig. 20 - Variation de la résistivité au cours de vieillissements isothermes à partir d'un état réverti

a) Variation en valeurs relatives $\Delta\rho$

b) Variation en valeurs absolues ρ

Cette chute initiale se produisant dès les premières secondes de traitement à 160, 200 et 300°C est cependant bien plus faible que celle constatée sur les échantillons trempés à l'eau, puisqu'elle est de l'ordre de - 1,5 à - 2 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ (fig. 19 b).

Ici aussi, le temps t_x nécessaire pour atteindre une diminution de ρ de - 150 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ est déterminé pour les températures T_V de 200, 250 et 300°C. Les valeurs de t_x sont également reportées dans le tableau II. D'après ces résultats, on constate que, par rapport aux vieillissements après trempe à l'eau, la cinétique est fortement ralentie dans toute la gamme de températures T_V .

- après réversion, seules les courbes de variation de la résistivité à 20, 160, 200 et 300°C ont été déterminées (fig. 20 a et 20 b). En ce qui concerne la cinétique d'évolution de la résistivité on peut remarquer qu'à 20°C et 160°C elle est plus lente que celle relative à l'état initial trempé à l'alcool (comparer fig. 20 a et 19 a), tandis qu'à 200 et 300°C elle est trouvée plus rapide (tableau II). Cependant, par rapport à la trempe à l'eau, la cinétique de vieillissement sur l'état réverti est toujours plus lente, quelle que soit la température T_V .

Tableau II

Etat initial	T_V	t_x (à - 150 m $\mu\Omega \times \text{cm}$)
trempé à l'eau	200°C	3 h
	250°C	18 mn
	300°C	3 mn
trempé à l'alcool	200°C	8 h
	250°C	1 h 15 mn
	300°C	18 mn
état réverti	200°C	5 h
	300°C	12 mn

1.3. OBSERVATION DE LA MICROSTRUCTURE AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE

Afin de connaître l'influence des divers modes de trempe sur l'état structural des alliages en cours de vieillissement, des échantillons ont été trempés, soit dans l'eau, soit dans l'alcool, soit par trempe étagée et soumis ensuite à des traitements thermiques de durées variables à des températures T_V comprises entre 120 et 300°C.

Pour des températures inférieures à 120°C, quel que soit l'état initial considéré, la microdiffraction électronique permet de détecter éventuellement des modifications de la structure, mais elle ne peut pas fournir de renseignements sur la forme et la répartition des précipités (nombre, taille, sites de germination etc). Aussi, nous nous sommes limités à des observations relatives à des états assez avancés de précipitation (correspondant à des températures T_V plus élevées ($T_V > 120^\circ\text{C}$)). De plus, puisque la microdiffraction, même pour ces états assez avancés, ne donne pas de résultats suffisamment précis, nous n'avons pas essayé de déterminer la nature des phases précipitées. Dans notre étude, nous nous sommes d'ailleurs borné à étudier la répartition finale des précipités, laquelle peut être du type homogène ou du type hétérogène. Nous avons donc exclu toute étude statistique concernant le nombre ou la taille des précipités ainsi que le nombre des dislocations.

1.3.1. Structures observées après trempe à l'eau

Dans le cas d'un état initial trempé à l'eau, il faut attendre 50 h à 120°C pour pouvoir observer, sur les lames minces, de très fines aiguilles discernables uniquement par le contraste important auquel elles donnent lieu (fig. 21). La répartition des aiguilles est alors parfaitement homogène dans toute la matrice.

Après un vieillissement durant 24 h à 160°C (fig. 22), la répartition du précipité est toujours homogène, toutefois la taille des aiguilles semble un peu plus importante. Puisqu'aucune étude systématique



Fig. 21 - 50 h à 120°C (x 100'000)

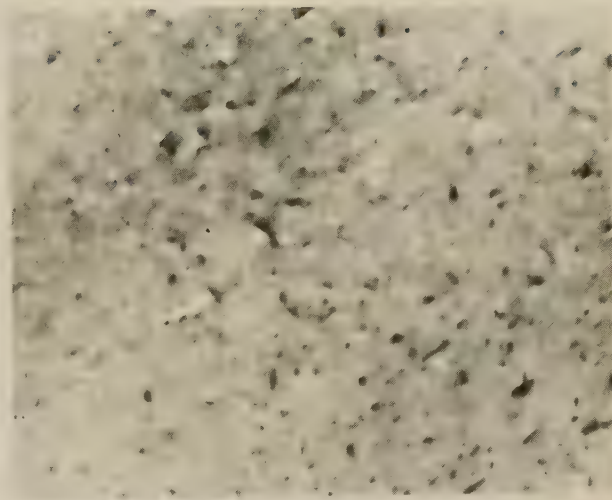


Fig. 22 - 16 h à 160°C (x 100'000)

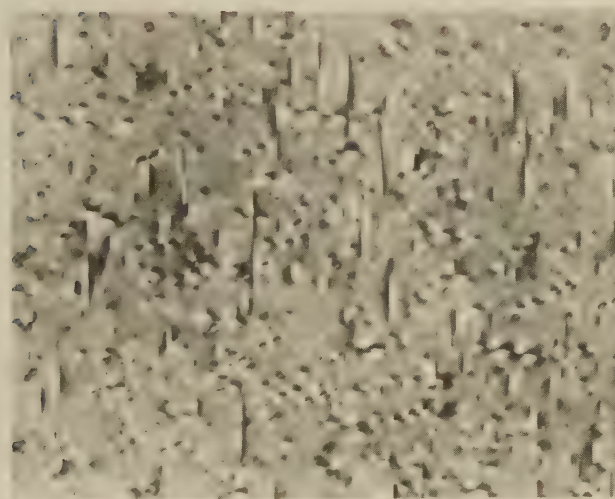


Fig. 23 - 3 h à 200°C (x 50'000)

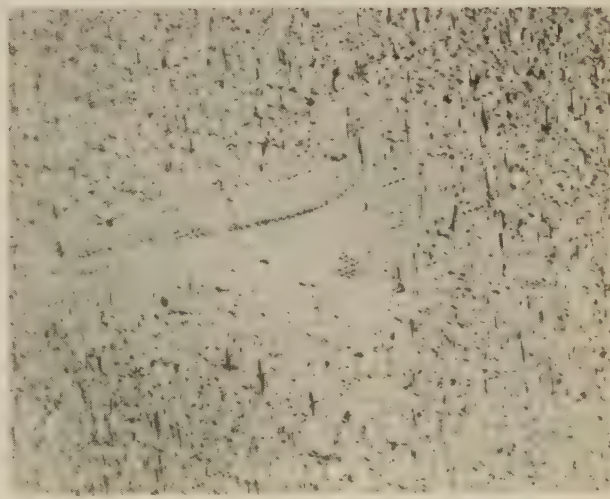


Fig. 24 - 3 h à 200°C (x 20'000)

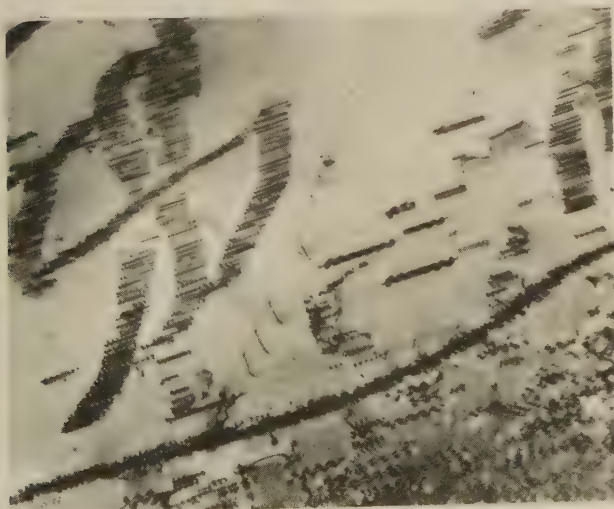


Fig. 25 - 2 h à 225°C (x 20'000)

Fig. 21 à 25 - Micrographies électroniques d'échantillons vieillis pendant différents temps à diverses températures à partir d'un état trempé à l'eau.

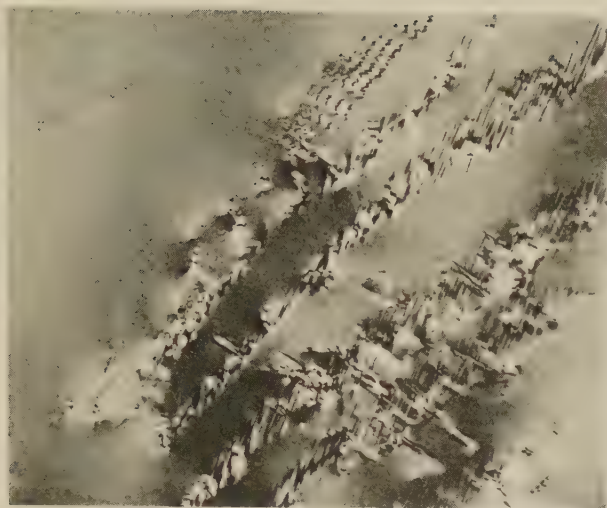


Fig. 26 - 6 mm à 250°C (x 20'000)

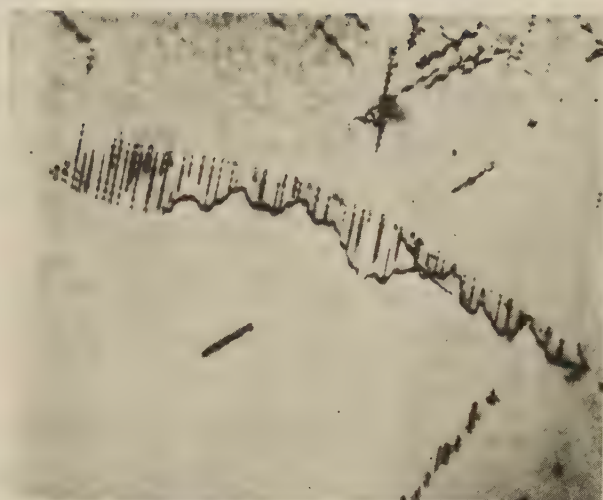


Fig. 27 - 6 mm à 250°C (x 20'000)

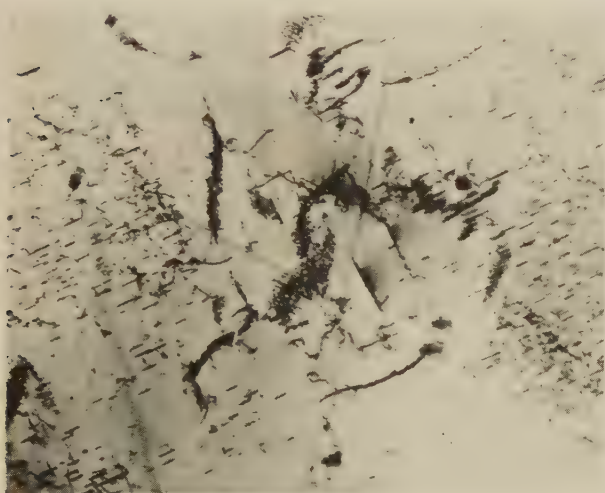


Fig. 28 - 6 mm à 250°C (x 5'000)

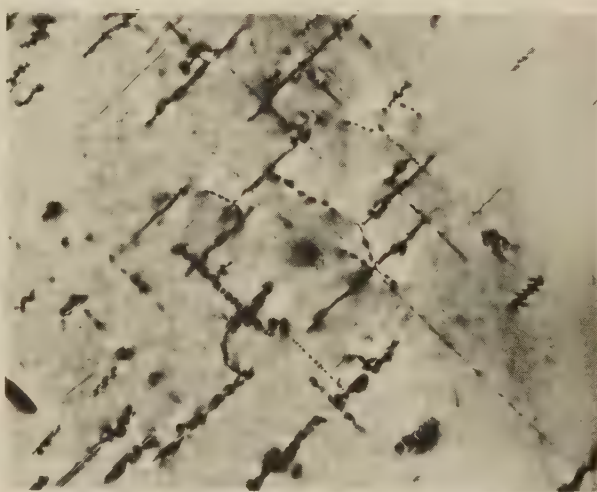


Fig. 29 - 6 mm à 250°C (x 50'000)

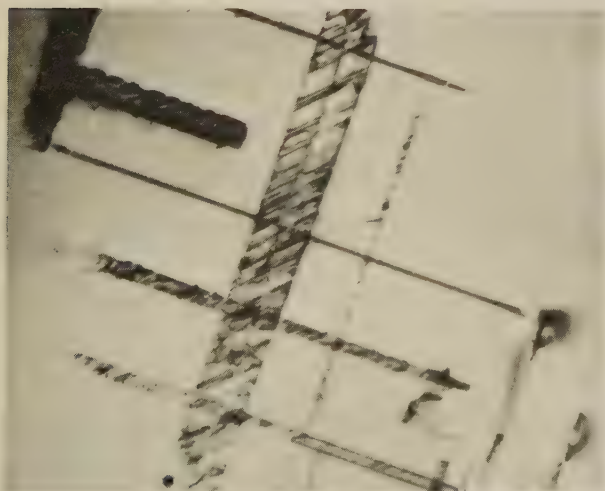


Fig. 30 - 20 mm à 300°C (x 20'000)

Fig. 26 à 30 - Micrographies électroniques d'échantillons vieillis pendant différents temps à diverses températures à partir d'un état trempé à l'eau.

n'a été entreprise pour mesurer la taille et le nombre de précipités, nous ne pouvons préciser davantage.

- après 3 h à 200°C, le type d'aiguilles est le même et leur répartition encore homogène (fig. 23). Toutefois, à certains endroits très rares, des dislocations sont décorées et entourées d'une zone dépourvue d'aiguilles (fig. 24).

- après un traitement de 2 h à 225°C, on commence déjà à voir beaucoup de plages où les précipités prennent naissance sur les dislocations (fig. 25).

- Mais ce n'est qu'à 250°C que tous les précipités germent de façon hétérogène. Très souvent les précipités (qui sont ici plutôt des baguettes) sont alors alignés les uns à côté des autres pour former des sortes de "rubans" et les dislocations qui ont servi de sites de germination ne sont pas toujours visibles (fig. 26). Dans certains cas pourtant celles-ci sont bien mises en évidence (fig. 27) et les dislocations peu rectilignes ont une forme très tourmentée.

D'autres plages de l'état vieilli à 250°C, où les précipités semblent à première vue être répartis de façon homogène, montrent, à plus fort grossissement, que les baguettes sont en fait pratiquement toutes liées à des dislocations (fig. 28 et 29).

- A 300°C finalement, on observe la formation de plaquettes assez massives (fig. 30) indiquant la précipitation de la phase d'équilibre β (Mg_2Si).

* * *

Aux environs de 225°C, il existe donc une transition entre la précipitation homogène et la précipitation hétérogène ; toutefois cette transition n'est pas très nette ; pour des températures T_v inférieures à 225°C, il existe toujours une certaine tendance à la "décoration" des dislocations et au-dessus de 225°C on trouve encore des plages où il est difficile de trancher entre précipitation hétérogène et homogène.

1.3.2. Structures observées après trempe à l'alcool

Après une trempe à l'alcool, on retrouve en principe les mêmes

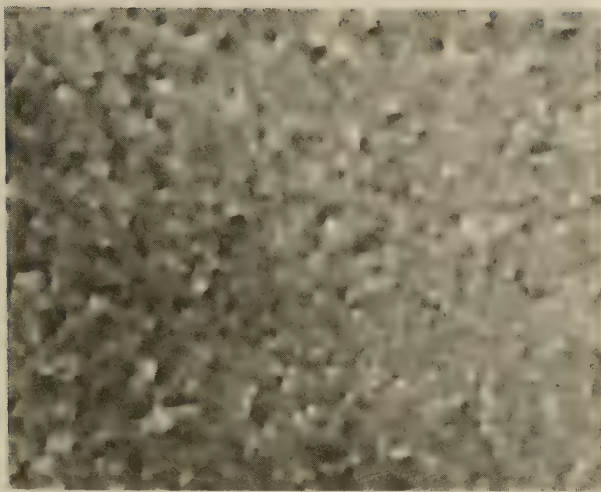


Fig. 31 - 50 h à 120°C (x 100'000)



Fig. 32 - 16 h à 160°C (x 100'000)



Fig. 33 - 3 h à 200°C (x 10'000)



Fig. 34 - 1 h à 250°C (x 10'000)



Fig. 35 - 20 mn à 300°C (x 20'000)

Fig. 31 à 35 - Micrographies électroniques d'échantillons vieillis pendant différents temps à diverses températures à partir d'un état trempé à l'alcool.

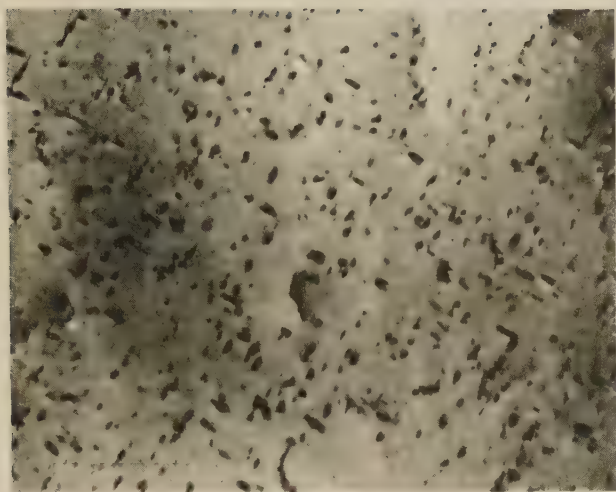


Fig. 36 - Micrographie électronique d'un échantillon vieilli pendant 16 h à 160°C à partir d'un état réverti (x 50'000)

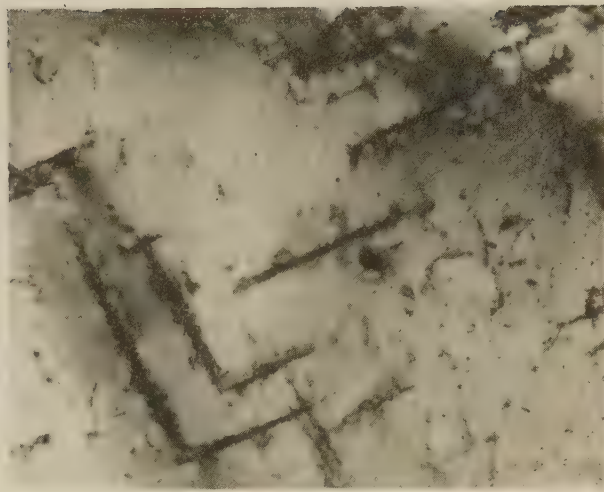


Fig. 37 - Micrographie électronique d'un échantillon vieilli pendant 3 h à 200°C à partir d'un état réverti (x 20'000)

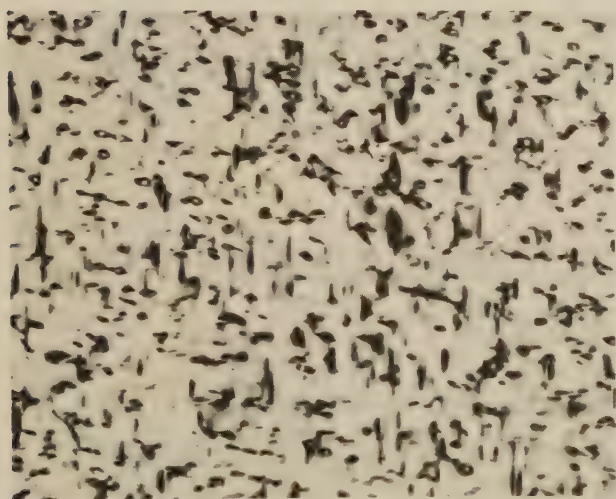


Fig. 38 - Micrographie électronique d'un échantillon vieilli pendant 16 h à 160°C à partir d'un état obtenu par trempe étagée (x 50'000)

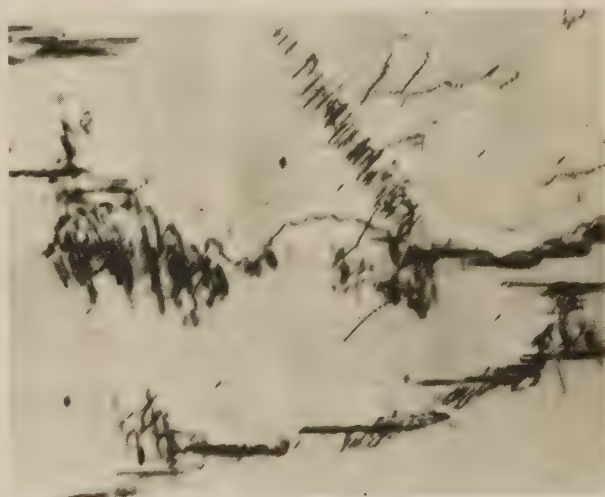


Fig. 39 - Micrographie électronique d'un échantillon vieilli pendant 3 h à 200°C à partir d'un état obtenu par trempe étagée (x 20'000)

aspects de précipitation mais la température de transition entre la précipitation homogène et hétérogène est décalée vers une température plus basse et le changement de faciès est alors plus net.

La série de photos des figures 31 à 35 montre l'évolution du mode de précipitation pour des vieillissements conduits à différentes températures T_v comprises entre 120°C et 300°C.

La transition entre la précipitation homogène et la précipitation hétérogène est donc située entre 160°C et 200°C ainsi que le montrent les micrographies (comparer les fig. 32 et 33).

1.3.3. Structures observées après réversion et après trempe étagée

Après réversion comme après trempe étagée on retrouve le même faciès de précipitation que dans le cas d'une trempe à l'alcool, la transition entre la précipitation homogène et la précipitation hétérogène étant également située entre 160 et 200°C (fig. 36 et 37, 38 et 39).

2. VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE

Nous avons déjà dit dans l'introduction que les traitements thermiques avec prévieillissement à la température ambiante conduisaient à des résultats assez particuliers dans le cas des alliages Al-Mg₂Si. Ces particularités ont d'ailleurs fait l'objet de nombreuses publications antérieures. Le problème intéressant notamment les industriels, se place au niveau des propriétés mécaniques maximales obtenues après un vieillissement, leurs valeurs pouvant dépendre du fait que le revenu final est ou non précédé d'un vieillissement à température ambiante ("attente à l'ambiante").

Ayant vu dans le cas de notre alliage que, lors des vieillisse-

ments directs, la valeur maximale de $\sigma_{0,2}$ n'est atteinte dans un temps raisonnable (500 h) qu'à partir d'une température de revenu de l'ordre de 160°C, nous avons entrepris des essais comparatifs avec un prévieillissement de 100 heures à 20°C pour les températures de 160°C, 200°C et 250°C. De plus les deux cas de trempe initiale (à l'eau ou à l'alcool) ont été envisagés.

2.1. VIEILLISSEMENTS A 160°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPÉ A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 40)

Quel que soit le mode de trempe, les courbes de vieillissement à 160°C avec attente durant 100 h à 20°C montrent que le maximum de $\sigma_{0,2}$ est égal à 18,5 daN/mm² ; par contre les courbes sans attente (en pointillé) atteignent des maxima différents : dans le cas d'une trempe à l'eau, on trouve encore 18,5 daN/mm², mais dans le cas d'une trempe à l'alcool, le maximum ne se situe qu'à 16,5 daN/mm². Il s'ensuit donc qu'une attente à l'ambiante ne permet pas d'accroître les propriétés mécaniques maximales dans le cas d'une trempe à l'eau, mais qu'après une trempe à l'alcool, elle permet de récupérer 2 daN/mm². Les valeurs des maxima respectifs et les gains de $\sigma_{0,2}$ (en $\Delta(\sigma_{0,2})_{\max}$ et en %) sont d'ailleurs reportés dans le tableau III, permettant ainsi une comparaison plus facile.

2.2. VIEILLISSEMENTS A 200°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPÉ A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 41)

Dans le cas des vieillissements conduits à 200°C, les valeurs maximales de $\sigma_{0,2}$ sont de façon générale moins élevées que celles mesurées au cours des vieillissements à 160°C ; le maximum atteint par un vieillissement direct après trempe à l'alcool est particulièrement bas, (9,5 daN/mm²). Une attente préliminaire à l'ambiante permet de récupérer 3 daN/mm² puisque le maximum est alors situé à 12,5 daN/mm².

Dans le cas de la trempe à l'eau, le maximum de $\sigma_{0,2}$ atteint par vieillissement direct est égal à 13 daN/mm² ; avec attente à l'ambiante

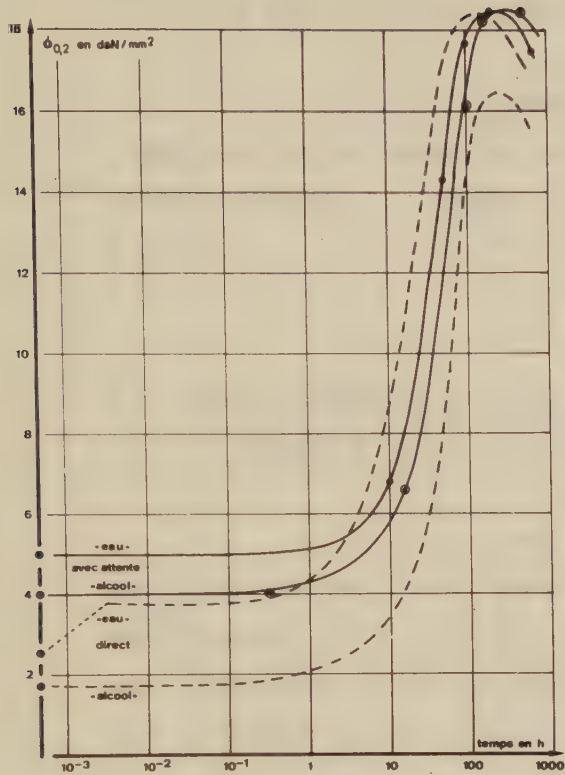
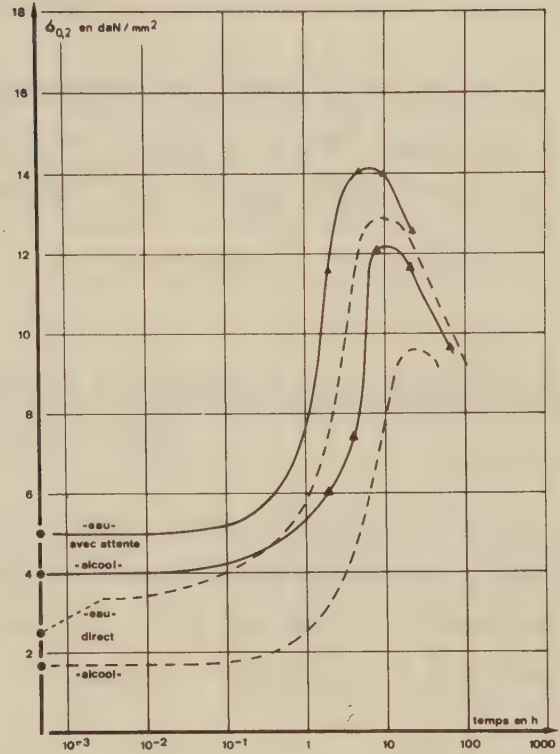
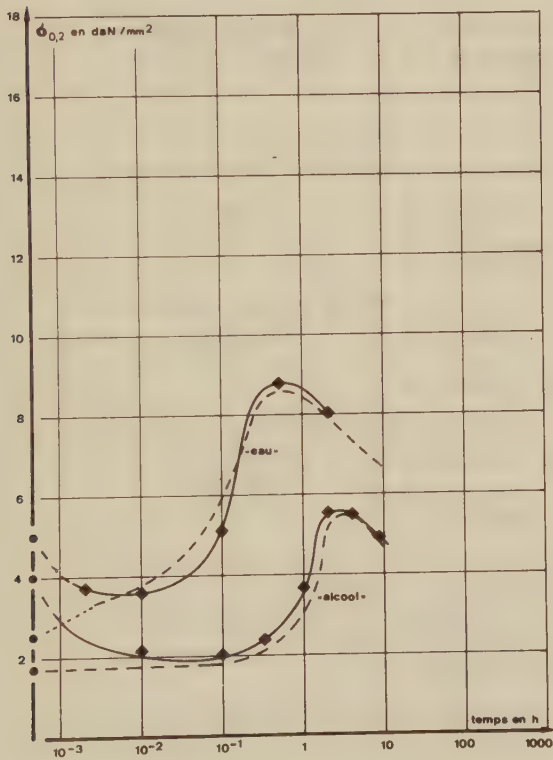
Fig. 40 - $T_v = 160^\circ\text{C}$ Fig. 41 - $T_v = 200^\circ\text{C}$ Fig. 42 - $T_v = 250^\circ\text{C}$

Fig. 40 à 42 - Variation de la limite élastique $\sigma_{0,2}$ au cours de vieillissements avec attente à l'ambiante conduits à différentes températures et dans les deux cas de trempe initiale (à l'eau ou à l'alcool). En pointillé : courbes sans attente.

il est un peu plus élevé encore (14 daN/mm^2).

Le gain de propriétés mécaniques résultant de l'attente à l'ambiante entre trempe et revenu est donc ici de 3 daN/mm^2 pour les échantillons trempés à l'alcool et de 1 daN/mm^2 dans le cas d'une trempe initiale à l'eau.

2.3. VIEILLISSEMENTS A 250°C AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE DANS LES DEUX CAS DE TREMPE A L'EAU OU A L'ALCOOL (FIG. 42)

L'on peut noter qu'à 250°C , les valeurs des maxima de $\sigma_{0,2}$ sont très basses, la différence entre les échantillons trempés à l'eau et ceux trempés à l'alcool est très importante ($8,75 \text{ daN/mm}^2$; $5,5 \text{ daN/mm}^2$), par contre dans aucun des deux cas, l'attente à l'ambiante n'a d'influence sur la valeur de ces maxima.

TABLEAU III

température de vieillissement	mode de trempe	$(\sigma_{0,2})_{\text{max}}$ [daN/mm^2]			gain en % *
		sans "attente"	avec "attente"	$\Delta(\sigma_{0,2})_{\text{max}}$	
160°C	à l'eau	18,5	18,5	0	0
	à l'alcool	16,5	18,5	2	14%
200°C	à l'eau	13,0	14,0	1	10%
	à l'alcool	9,5	12,0	2,5	40%
250°C	à l'eau	8,75	8,75	0	0
	à l'alcool	5,5	5,5	0	0
* gain [%] = $\frac{(\sigma_{0,2})_{\text{max}} \text{ avec "attente"} - (\sigma_{0,2})_{\text{max}} \text{ sans "attente"}}{(\sigma_{0,2})_{\text{max}} \text{ avec "attente"} - (\sigma_{0,2}) \text{ de l'état trempé}} \times 100$					

3. ESSAIS PARTICULIERS DE REVERSION

La dernière série des essais comprend les traitements de réversion, effectués sur les états vieillis pendant 100 heures à la température ambiante après trempe à l'eau et à l'alcool.

Il faut bien dire que des essais de réversion ont en fait été réalisés sur d'autres états, par exemple ceux correspondant au début du "palier" des courbes de durcissement (Fig. 14 et 15). Mais les résultats obtenus sont trop complexes pour être valablement exploités, par contre ceux relatifs à la réversion de l'état vieilli 100 h à 20°C ont fourni des résultats relativement importants.

Sachant que durant le prévieillissement à l'ambiante, la décomposition de la solution solide amène la formation de rassemblements d'atomes de soluté que nous appelons "zones de GUINIER-PRESTON", le traitement ultérieur effectué à une température de réversion T_R assez élevée, conduit forcément à une remise en solution partielle ou totale des zones. Par ces traitements il est donc possible d'obtenir des renseignements sur la stabilité de ces rassemblements formés à l'ambiante, donc des informations sur leur nature.

La manière la plus facile et la plus répandue pour connaître l'influence d'un traitement de réversion consiste à suivre l'évolution des propriétés mécaniques au cours de ce traitement. Comme les zones formées à l'ambiante causent un certain durcissement, leur remise en solution partielle ou totale est alors marquée par une baisse des propriétés mécaniques telles que $\sigma_{0,2}$.

Cet abaissement des propriétés n'est d'ailleurs que transitoire puisque les zones de GUINIER-PRESTON ne sont pas les seuls produits de décomposition possibles. Il est évident que la dissolution partielle ou totale des zones est suivie d'une nouvelle précipitation à la température T_R , ce qui amène, après un minimum de $\sigma_{0,2}$, un accroissement ultérieur des propriétés mécaniques.

Ainsi, de l'évolution de la limite élastique $\sigma_{0,2}$, nous avons pu déduire celle de la redissolution des zones de GUINIER-PRESTON et ceci en fonction de la température T_R du traitement de réversion. Ces résultats ont d'ailleurs été complétés par l'étude de l'évolution de la résistivité.

3.1. REVERSION DES PROPRIETES MECANIQUES ET ELECTRIQUES D'UN ETAT VIEILLI 100 HEURES A 20°C APRES TREMPE A L'EAU

Bien que la réversion des propriétés mécaniques soit considérée comme totale dès que le minimum de $\sigma_{0,2}$ atteint la valeur de l'état trempé, ce qui est le cas ici pour $T_R = 280^\circ\text{C}$ (fig. 43), nous avons préféré qualifier d'"état réverti" celui obtenu par réversion durant 4 sec à 300°C , puisqu'alors le niveau du minimum est étalé dans le temps, donc plus facilement déterminable. C'est d'ailleurs cet état réverti à 300°C qui a servi lors de l'étude des vieillissements isothermes directs dans le chapitre III - § 1.

En ce qui concerne l'évolution de la résistivité, durant le traitement de réversion à 300°C (fig. 44), on constate d'abord une chute brutale qui amène la résistivité à une valeur inférieure à celle de l'état fraîchement trempé. La valeur de ρ après la chute est d'ailleurs identique à celle observée après quelques secondes de traitement de vieillissement direct à 300°C sur l'état trempé à l'eau. On ne peut donc pas dire qu'il existe véritablement une "réversion de la résistivité". Si le traitement à 300°C est plus prolongé, ρ décroît alors régulièrement par suite de la précipitation relative à cette température.

Il faut encore signaler que la courbe d'évolution de ρ à 200°C a été déterminée et les résultats obtenus nous serviront essentiellement lors de la discussion générale des résultats.

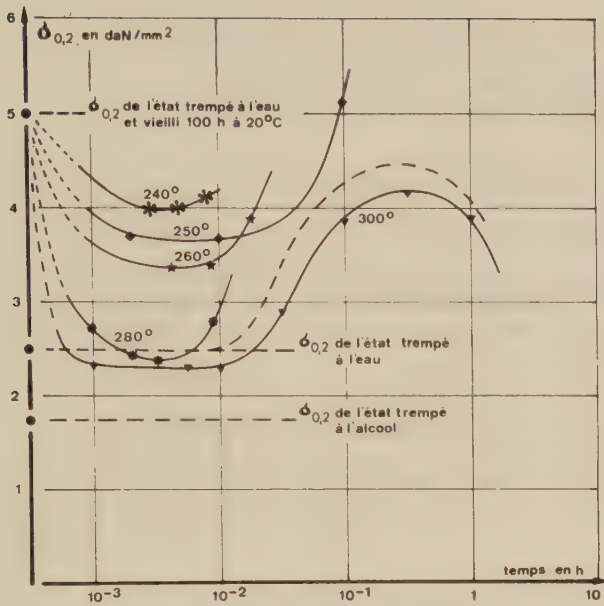


Fig. 43 - Variation de la limite élastique $\sigma_{0,2}$ au cours de traitements de réversion, à partir d'un état vieilli 100 h à 20°C après trempe à l'eau.

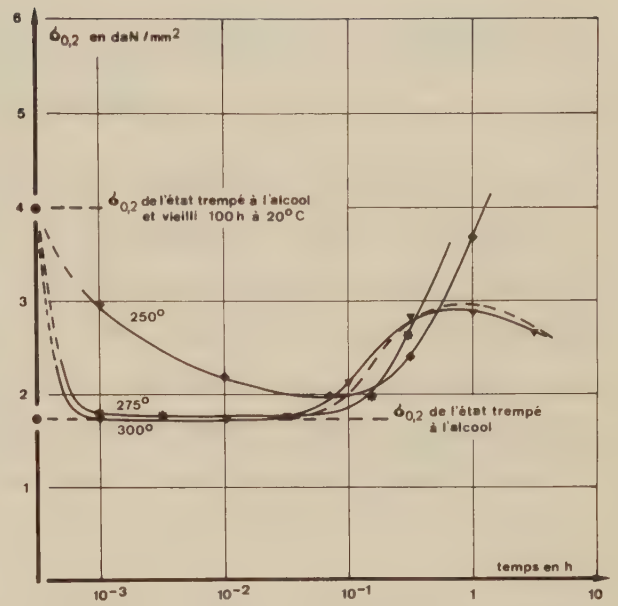


Fig. 45 - Variation de la limite élastique $\sigma_{0,2}$ au cours de traitements de réversion, à partir d'un état vieilli 100 h à 20°C après trempe à l'alcool.

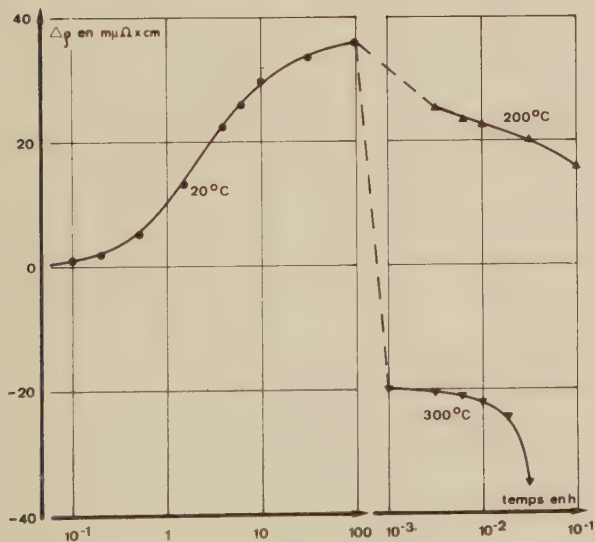


Fig. 44 - Variation de la résistivité $\Delta\rho$ au cours d'un traitement de réversion à 200°C et à 300°C à partir d'un état vieilli 100 h à 20°C après trempe à l'eau.

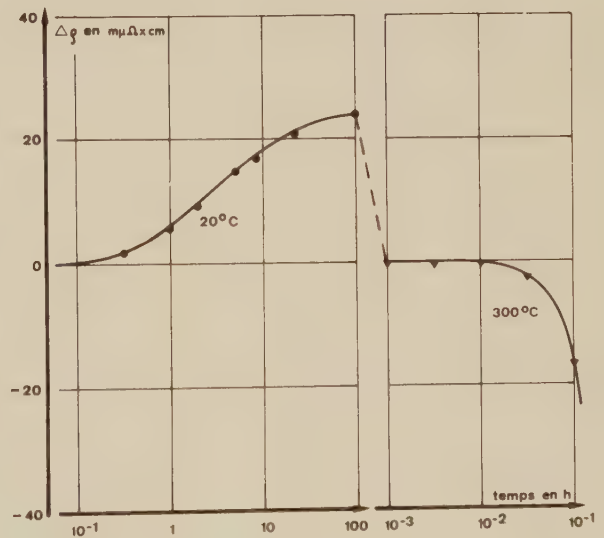


Fig. 46 - Variation de la résistivité $\Delta\rho$ au cours d'un traitement de réversion à 300°C à partir d'un état vieilli 100 h à 20°C après trempe à l'alcool.

3.2. REVERSION DES PROPRIETES MECANIQUES ET ELECTRIQUES D'UN ETAT VIEILLI 100 HEURES A 20°C APRES TREMPÉ A L'ALCOOL

Les courbes d'évolution à diverses températures T_R de la limite élastique $\sigma_{0,2}$ (fig. 45) à partir de l'état trempé à l'alcool et vieilli 100 h à 20°C présentent pratiquement les mêmes caractéristiques que celles relatives à l'état initialement trempé à l'eau et vieilli à 20°C. Toutefois le minimum de $\sigma_{0,2}$ atteint le niveau de l'état trempé pour une température T_R légèrement inférieure, soit 260°C au lieu de 280°C. Comme précédemment, le minimum constaté au cours d'une réversion à 300°C est également très étalé.

En ce qui concerne la résistivité (fig. 46), sa variation montre alors qu'il existe une véritable "réversion" de cette propriété puisque la valeur de la résistivité atteinte après 100 h à 20°C est ramenée, dès 4 sec de traitement à 300°C, à la valeur initiale ρ_0 de l'état fraîchement trempé à l'alcool. Ici encore la décroissance ultérieure de la résistivité lors d'un traitement plus prolongé à la température T_R est due à la précipitation, qui se produit ensuite à cette température.

CHAPITRE IV - DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS

La partie la plus importante de notre étude concerne les vieillissements isothermes directs conduits à partir des différents états initiaux choisis :

- état trempé à l'eau
- état trempé à l'alcool
- état réverti
- état obtenu par trempe étagée.

Nous discuterons donc tout d'abord de la structure de la solution solide sursaturée obtenue après chacun de ces quatre traitements, et ensuite nous verrons son incidence sur les vieillissements étudiés.

Nous reverrons en second lieu, à la lumière des connaissances acquises par l'étude des vieillissements directs, les résultats des essais particuliers concernant l'effet d'une attente à l'ambiante après trempe sur le vieillissement ultérieur ainsi que ceux relatifs aux essais de réversion.

1. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS

Etant donné la grande influence de l'état initial de la solution solide sursaturée sur le durcissement ultérieur, sur l'évolution de la résistivité au cours du vieillissement ainsi que sur la structure finale, il est important de discuter avant tout de l'état structural initial de cette solution solide.

1.1. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LA STRUCTURE DES DIFFERENTS ETATS INITIAUX

Avant d'aborder le rôle du mode de trempe, il est nécessaire de préciser que nous n'avons pu déterminer exactement les vitesses de refroidissement de nos échantillons lors d'une trempe à l'eau ou à l'alcool depuis 600°C. Nous pouvons cependant estimer l'ordre de grandeur de la vitesse moyenne de refroidissement par la mesure du temps qui sépare le début de la chute du moment où le bruit caractéristique de la fin de la caléfaction est entendu. Pour la trempe à l'eau, ce temps est de 0,25 sec environ et pour la trempe à l'alcool, il est de l'ordre de 3 sec. Ces mesures donnent donc une vitesse moyenne de quelques 10^3 degrés par seconde pour la trempe à l'eau ($\sim 2500^\circ/\text{sec}$) et de $200^\circ/\text{sec}$ pour la trempe à l'alcool. Cependant la vitesse moyenne de refroidissement n'est pas un critère suffisant car on sait que le refroidissement à l'eau donne une vitesse de refroidissement assez rapide dans le domaine des températures élevées alors que l'alcool produit un refroidissement à vitesse initiale plus lente et beaucoup plus constante dans le temps (66).

Nous avons constaté que la limite élastique $\sigma_{0,2}$ est plus basse après trempe lente à l'alcool qu'après trempe rapide à l'eau ou qu'après réversion d'un état vieilli à l'ambiante pendant 100 h après trempe à l'eau (comparer les figures 14, 15 et 16).

La résistivité par contre est plus basse dans le cas d'un état trempé lentement ou d'un état réverti que dans l'état trempé rapidement à l'eau, (comparer les figures 18, 19 et 20).

Les dislocations, les lacunes et l'état du soluté dans le réseau de la solution solide pouvant modifier les caractéristiques il importe de pouvoir préciser la structure initiale de l'alliage. En effet :

- la quantité de dislocations et la présence éventuelle de crans sur ces défauts peuvent affecter largement la limite élastique sans pour autant avoir une grande influence sur la résistivité,
- la quantité de lacunes gelées ne modifie pas sensiblement la limite élastique mesurée à l'ambiante, tandis qu'elle joue un rôle

important sur la résistivité,

- l'état du soluté modifie à la fois la limite élastique et la résistivité.

En fait, les caractéristiques initiales ne peuvent être connues que pour 3 des 4 modes d'obtention de la solution solide sursaturée (trempe à l'eau, trempe à l'alcool et réversion). Par contre l'état initial après trempe étagée ne peut pas être défini aussi rigoureusement par ses caractéristiques initiales en raison du fait qu'il est difficile de préciser l'origine des temps, c'est-à-dire de connaître l'instant précis où le métal a atteint sa température de vieillissement obtenue par trempe étagée. Ce cas sera donc discuté séparément.

a) Rôle possible des dislocations

La trempe "rapide" à l'eau induit des contraintes, ce qui accroît la quantité de dislocations présentes. Par ailleurs, ces dislocations présentent alors un grand nombre de crans, comme l'ont suggéré KIMURA et MADDIN dans le cas de l'aluminium pur (67). Il y a donc tout lieu de penser que la valeur plus élevée de la limite élastique constatée après trempe à l'eau pourrait être due aux dislocations. Les essais de réversion, dont il sera parlé dans un chapitre ultérieur, confirment d'ailleurs cette hypothèse :

- dans le cas des échantillons fraîchement trempés à l'eau, un réchauffage à 300°C ne permet pas de faire varier $\sigma_{0,2}$ avant 36 sec de maintien en température (Fig. 14). La variation observée pour des temps plus longs est dans le sens d'une augmentation de la limite élastique,

- dans le cas des échantillons trempés à l'eau et vieillis 100 h à 20°C, on constate, dès 4 sec de traitement à 300°C, une réversion totale de la limite élastique, sans pour autant qu'il soit possible de révertir en dessous de la limite élastique de l'état fraîchement trempé à l'eau. En d'autres termes, les échantillons trempés à l'eau ne peuvent, après un traitement de réversion, avoir une limite élastique aussi basse que celle observée sur les éprouvettes trempées à l'alcool.

Les résultats paraissent indiquer que la valeur plus élevée

de $\sigma_{0,2}$ observée sitôt après trempe à l'eau est due aux dislocations et non à des rassemblements d'atomes de soluté qui se seraient formés pendant la trempe ou durant les premiers instants après la trempe, puisque de tels rassemblements devraient pouvoir être révertis à 300°C comme le sont les amas (zones de GUINIER-PRESTON, par exemple) formés par maturation à 20°C.

Par ailleurs, le même raisonnement peut être évoqué pour le cas où l'on considérerait la possibilité de formation (durant la trempe à l'eau ou sitôt après) de rassemblements locaux de lacunes susceptibles de causer un certain durcissement.

Il faut remarquer aussi, que les quelques secondes de réversion à 300°C ne conduisent pas à une restauration complète des dislocations (par exemple un réarrangement des dislocations conduisant à une relaxation des contraintes), laquelle aurait pour effet de rabaisser la limite élastique jusqu'à celle de l'état trempé à l'alcool. Une très faible tendance dans ce sens est pourtant observable : la valeur de $\sigma_{0,2}$ pour des temps de vieillissement compris entre 4" et 35" est légèrement inférieure dans le cas de l'état initial réverti que dans celui de l'état initial trempé à l'eau (Fig. 43).

b) Rôle possible des lacunes

La trempe rapide à l'eau donne une résistivité initiale plus élevée que celle mesurée après trempe à l'alcool ; par ailleurs une réversion de l'état vieilli à l'ambiante après trempe à l'eau ramène ρ à une valeur identique à celle de la trempe à l'alcool. De tels effets peuvent être en rapport avec la présence de lacunes "gelées" durant la trempe rapide et à leur annihilation par réversion.

Les essais de vieillissement à diverses températures supérieures à l'ambiante confirment cette hypothèse :

- Après la trempe à l'eau, un vieillissement à une température T_V égale ou supérieure à 160°C amène une chute brutale de la résistivité dès les premières secondes de traitement (Fig. 18 b). De plus, la valeur de cette baisse initiale atteint une valeur limite égale à - 20 m $\mu\Omega \times \text{cm}$ pour $T_V \geq 200^\circ\text{C}$. On constate alors que la résistivité après quelques secon-

des de vieillissement est égale à celle des échantillons fraîchement trempés à l'alcool.

- Après la trempe à l'alcool, on observe également une baisse de la résistivité, bien que négligeable (- 1,5 m $\mu\Omega$ x cm), dès les premières secondes de vieillissement à partir de 160°C.

Il convient de noter que la chute brutale de la résistivité des échantillons trempés à l'eau, observée dès les premières secondes de vieillissement à 160°C est du même ordre de grandeur que la baisse de résistivité d'un aluminium pur (99,995%) trempé depuis 600°C à l'eau et porté à des températures T_V de l'ordre de 50°C (chute de 19 m $\mu\Omega$ x cm, que FEDERIGHI (68) attribue à l'élimination des lacunes gelées).

Nous pensons que la baisse initiale de la résistivité de nos échantillons est due aussi à l'élimination des lacunes, mais que celle-ci est décalée vers des températures T_V plus élevées à cause de l'interaction des atomes de soluté (Mg et Si) avec les lacunes.

Comme l'écart de résistivité initiale entre les états trempés à l'eau et à l'alcool est également du même ordre de grandeur, cette différence peut être liée au fait que pendant la trempe lente à l'alcool presque toutes les lacunes ont eu le temps de s'éliminer ou de se regrouper tandis qu'après trempe à l'eau une grande partie des lacunes libres reste encore gelée.

Finalement, puisque la réversion d'un état trempé à l'eau et vieilli 100 h à 20°C ramène la résistivité non seulement à celle de l'état initial (trempé à l'eau) mais l'abaisse jusqu'au niveau de l'état trempé à l'alcool (Fig. 44), nous pensons que la dissolution des zones de GUINIER-PRESTON formées à l'ambiante est accompagnée d'une élimination des lacunes piégées initialement par la trempe à l'eau et toujours présentes après le vieillissement à 20°C (sous forme de micro-boucles ou dans les zones elles-mêmes).

Ainsi, les trois états initiaux dont les propriétés initiales peuvent être mesurées sont caractérisés de façon très schématique par :

- un grand nombre de lacunes et de dislocations, après trempe à l'eau,
- peu de lacunes gelées et de dislocations après trempe à l'alcool,

- un grand nombre de dislocations et peu de lacunes, après réversion.

L'état structural de la solution solide sursaturée après la trempe étagée reste à préciser. Nous avons vu que la limite élastique $\sigma_{0,2}$ initiale était difficile à mesurer et variait avec la température du bain de trempe, surtout pour les basses températures. A 160°C et à 200°C toutefois, les valeurs de $\sigma_{0,2}$ initiales obtenues par extrapolation au temps 0 sont presque identiques et égales à celles observées après trempe à l'alcool. De plus, l'évolution ultérieure des propriétés durant le vieillissement étant également très semblable à celle d'un état initial trempé à l'alcool, nous pensons qu'une trempe étagée conduit à une structure (tout au moins aux températures supérieures à 160°C) semblable à celle obtenue par trempe à l'alcool. Il est raisonnable de penser que la structure contient alors peu de dislocations de trempe et de lacunes gelées.

Après avoir défini les quatre états initiaux considérés, il reste à voir quelle est leur influence sur le vieillissement ultérieur. Etant donné que dans les alliages Al-Mg₂Si la décomposition de la solution solide sursaturée a lieu en plusieurs étapes distinctes, relativement mal connues, tant en ce qui concerne la nature des produits de décomposition que les domaines de températures où ils apparaissent, nous essayerons de relier les variations de propriétés et de structure observées à des étapes possibles de la décomposition et ceci pour les quatre cas d'état initial envisagés.

1.2. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS APRES TREMPE A L'EAU

Rappelons que l'état structural de la solution solide sursaturée obtenue par trempe à l'eau est caractérisé par la présence d'un grand nombre de lacunes "gelées" et de dislocations de trempe. Leur influence sur la décomposition au cours des différents vieillissements est discutée dans le paragraphe suivant.

1.2.1. Séquence possible de précipitation après trempe à l'eau

1.2.1.1. Déductions des résultats relatifs aux mesures de la limite élastique

La série des courbes de variation de la limite élastique en fonction du temps (fig. 14) présente selon la température de vieillissement, les caractéristiques classiques de durcissements "à froid", "mixte" et "à chaud" telles qu'elles ont été classifiées par Köster (cf. Introduction).

On aurait ainsi, pour la décomposition de la solution solide sursaturée, la séquence suivante :

- à 20°C : formation unique de zones de Guinier-Preston (durcissement "à froid"),
- entre 80°C et 250°C : formation initiale de zones de Guinier-Preston puis transformation de ces zones en un précipité ultérieur (éventuellement du type β') (durcissement "mixte"),
- à 300°C : formation unique de β' ou de β (durcissement "à chaud").

Il faut toutefois remarquer que, par rapport à d'autres alliages à durcissement structural tels que Al-Cu, le durcissement à l'ambiante et le durcissement initial jusqu'au palier à plus haute température est relativement faible (20% du maximum de propriétés mécaniques obtenues à 160°C). Ce premier produit de décomposition joue donc un rôle relativement peu important en tant que phase durcissante. On peut penser que la taille ou la quantité de cette phase soient très faibles ou que sa structure permette une cisssion facile par les dislocations.

1.2.1.2. Déductions des résultats relatifs aux mesures de la résistivité

La séquence dans la décomposition de la solution solide sursaturée après trempe à l'eau, telle qu'elle est révélée par la variation de la résistivité, diffère beaucoup de celle déduite de la variation de la limite élastique.

Jusqu'à 120°C, l'évolution de la résistivité est encore en accord avec celle de $\sigma_{0,2}$, puisqu'elle indique par sa montée la formation initiale de zones de Guinier-Preston et par sa décroissance ultérieure la transformation de celles-ci en un précipité n'ayant plus comme les zones la propriété de faire augmenter la résistivité (fig. 18 a).

A partir de 160°C, par contre, la résistivité ne présente plus d'augmentation initiale. Bien au contraire, on observe une chute très brutale de ρ dès les premières secondes de traitement (fig. 18 b). C'est ce point important que nous devons surtout discuter ici.

Nous avons vu (§ 1.1.) que la chute initiale de résistivité pouvait être attribuée à l'annihilation des lacunes en sursaturation dans la matrice, cette annihilation étant possible à partir de 160°C. A des températures inférieures, l'interaction entre atomes de soluté et défauts ponctuels est en effet encore assez forte pour que les lacunes restent piégées dans la matrice ou dans les zones de Guinier-Preston, mais à partir de 160°C, les lacunes se trouvent soudainement libérées.

En ce qui concerne la précipitation, l'évolution de la résistivité après trempe à l'eau suggère, qu'à partir de 160°C, un processus très différent de celui existant à 120°C peut avoir lieu (fig. 18 b). Les lacunes n'étant plus alors fortement "associées" aux atomes de soluté, on peut penser qu'entre 120°C et 160°C existe une transition marquant la fin du processus de formation initiale de zones de Guinier-Preston, et qu'à partir de 160°C une autre forme de précipité, telle que la phase intermédiaire β' , peut prendre directement naissance. Il faut cependant noter qu'à 160°C la chute initiale de ρ n'atteint pas encore $- 20 \text{ m}\mu\Omega \times \text{cm}$ (valeur correspondant à la chute initiale maximale) ; à cette température il y aurait peut-être formation simultanée de zones de Guinier-Preston et de phase β' . Ce n'est qu'à partir de 200°C que la formation unique de β' serait possible.

Il ne nous semble pas que la chute initiale de ρ puisse être expliquée par un simple phénomène de précipitation, puisque cette chute initiale atteint à partir d'une certaine température (200°C) un seuil qu'elle ne dépasse pas pour des températures plus élevées. S'il s'agis-

sait d'un processus de précipitation, il devrait y avoir une continuité dans l'évolution des courbes de résistivité et la diminution relative de ρ devrait augmenter avec la température, ce qui n'est pas en accord avec nos expériences (fig. 18 b).

En résumé, l'évolution de la résistivité suggère que la transition entre la formation initiale des zones de Guinier-Preston et le développement initial d'une phase ultérieure a lieu entre 120°C et 160°C. La formation de la nouvelle phase serait d'ailleurs accompagnée de l'élimination des lacunes "gelées" par la trempe.

1.2.1.3. Déductions des résultats relatifs aux observations de la micro-structure

Le seul changement de structure observé au microscope électronique est celui du passage d'une précipitation d'allure homogène à une précipitation hétérogène lorsque T_V est de l'ordre de 225°C. D'après la théorie classique, cette transition marque la fin de la formation initiale de zones, la décomposition de la solution solide sursaturée débutant alors par une phase intermédiaire. En d'autres termes, les précipités sont répartis de façon homogène tant qu'ils ont pu se transformer à partir des zones de Guinier-Preston (qui germent de façon homogène), les précipités de type β' eux-mêmes prenant naissance préférentiellement sur les dislocations (cf. PASHLEY (60)).

* * *

On constate donc que les observations au microscope électronique fournissent encore un résultat différent de ceux donnés par les mesures de propriétés mécaniques et par la résistivité. Les trois méthodes d'investigation utilisées révèlent, pour la transition entre la formation initiale de zones de Guinier-Preston et celle de l'apparition initiale de la phase β' , trois intervalles de températures différents :

- les courbes de $\sigma_{0,2}$ indiquent un changement de mode de précipitation entre 250°C et 300°C (durcissement "mixte" puis durcissement "à chaud"),

- les mesures de résistivité montrent une transition entre 120°C et 160°C (accroissement initial puis chute brutale de ρ),
- les observations au microscope électronique finalement suggèrent que le mode de décomposition change entre 200°C et 250°C (précipitation homogène puis hétérogène).

1.2.2. Interprétation des phénomènes observés au cours des vieillissements après trempe à l'eau

Bien que nous n'ayons pas de preuves expérimentales directes permettant de rendre compte des apparentes contradictions précédemment décrites, il est cependant possible de formuler quelques hypothèses concernant les mécanismes possibles de précipitation dans l'alliage $\text{Al-Mg}_2\text{Si}$ étudié.

Il faut notamment expliquer le fait que pour des vieillissements à des températures comprises entre 160 et 225°C après trempe à l'eau, le durcissement initial ne s'accompagne d'aucun accroissement de la résistivité bien que la précipitation observable après des temps de vieillissement plus prolongés soit homogène.

Le premier stade de la décomposition de la solution solide sursaturée ne peut alors correspondre à la formation de zones de GUINIER-PRESTON, telles qu'elles sont connues actuellement, puisque de telles zones produiraient un accroissement de la résistivité et non la diminution brutale effectivement constatée. La présence initiale de ces zones expliquerait pourtant l'aspect homogène de la précipitation ultérieure. Il ne peut s'agir non plus de l'apparition de la phase intermédiaire β' , telle qu'elle a été trouvée par PASHLEY (60) puisque cette phase se localise préférentiellement sur les dislocations quand sa formation n'est pas précédée par le développement de zones de GUINIER-PRESTON.

Nous sommes donc amenés à penser, contrairement aux observations de PASHLEY, que la phase intermédiaire β' peut, dans certaines conditions particulières, précipiter directement de façon homogène, sans passer par

l'intermédiaire des zones.

Ce postulat ne suffit pourtant pas encore pour expliquer tous les désaccords précités, notamment le fait que l'évolution de $\sigma_{0,2}$ révèle un durcissement du type "mixte" jusqu'à 250°C. C'est l'étude du comportement des lacunes qui nous permettra de comprendre pourquoi à 160°C et 200°C, on observe une augmentation initiale de $\sigma_{0,2}$, suivie d'un "palier", une chute de p et une précipitation homogène de β' .

Nous avons vu qu'à partir de 160°C les liaisons entre lacunes et atomes de soluté commencent à être rompues et que les lacunes s'annihilent alors très rapidement.

Il convient donc de se demander ce que deviennent d'une part les lacunes libérées des atomes de soluté, et d'autre part, les atomes de soluté eux-mêmes.

1.2.2.1. Modes possibles d'élimination des lacunes en sursaturation

Les lacunes ont trois possibilités de s'éliminer :

- i) Aux joints de grains et aux surfaces libres de l'échantillon.
- ii) Sur les dislocations.
- iii) Par rassemblement avec formation de "clusters" ou de boucles.

i) Elimination des lacunes aux interfaces

Dans nos éprouvettes assez massives, les parcours moyens seraient beaucoup trop importants pour que toutes les lacunes puissent s'éliminer aux joints de grains et aux surfaces externes (interface métal-oxyde). Il est cependant probable que dans les zones proches des interfaces, celles-ci agissent comme des pièges efficaces et éliminent ainsi préférentiellement les lacunes voisines. Si les lacunes s'annihilent dans le métal massif, c'est donc un des deux autres modes d'élimination qui reste prépondérant.

ii) Elimination des lacunes sur les dislocations

Supposons tout d'abord que les lacunes viennent simplement se

concentrer autour de la dislocation la plus proche. La concentration en lacunes est approximativement égale à 10^{-4} et la densité des dislocations peut être estimée à 10^8 cm/cm^3 ; comme il y a environ 6×10^{22} atomes dans un cm^3 , on trouve 6×10^{14} atomes par cm de dislocation. Il en résulte que $6 \times 10^{14} \times 10^{-4} = 6 \times 10^{10}$ lacunes doivent pouvoir s'éliminer par cm de dislocation. Si l'on admet un modèle simpliste dans lequel les lacunes forment un tube autour de la dislocation, ce tube aurait un rayon r de :

$$6 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3} r^2 \pi \text{ cm}^2 = 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-1}$$

ce qui donne $r \cong 0,6 \times 10^{-6} \text{ cm}$

soit un diamètre de 120 Å environ.

Un défaut de cette dimension serait facilement observable au microscope électronique, or rien de tel n'a jamais été observé. Il faut donc rejeter ce type d'élimination des lacunes, consistant en un simple regroupement autour des dislocations.

Le seul mode possible reste l'élimination de la lacune à son arrivée sur la dislocation par suite du phénomène de montée. En prenant les mêmes valeurs approximatives que celles indiquées plus haut, la dislocation parcourrait alors par montée une distance de l'ordre de 3000 Å.

A l'appui de cette hypothèse viennent des observations faites au microscope électronique. Assez souvent nous avons observé sur des lames minces d'un échantillon trempé à l'eau et vieilli à 200°C, des dislocations de faciès très tourmenté indiquant des "montées" locales très importantes (fig. 47 et 48).

iii) Ségrégation des lacunes sous forme de clusters ou de boucles

En ce qui concerne la ségrégation possible des lacunes libres par rassemblement sous forme de "clusters" ou de boucles, il convient de mentionner les travaux de NUYTEN (69, 70) sur l'alliage Al-Cu et celui de OZAWA et KIMURA (71) sur un alliage Al-Si.

Selon ces auteurs, les lacunes initialement piégées par les atomes de soluté pourraient lors de leur libération se ségréger sous forme de petits amas pouvant eux-mêmes causer un durcissement non né-

Fig. 47 et 48 - Micrographies électroniques d'un échantillon vieilli pendant 3 h à 200°C à partir d'un état trempé à l'eau.



Fig. 47

x 50'000

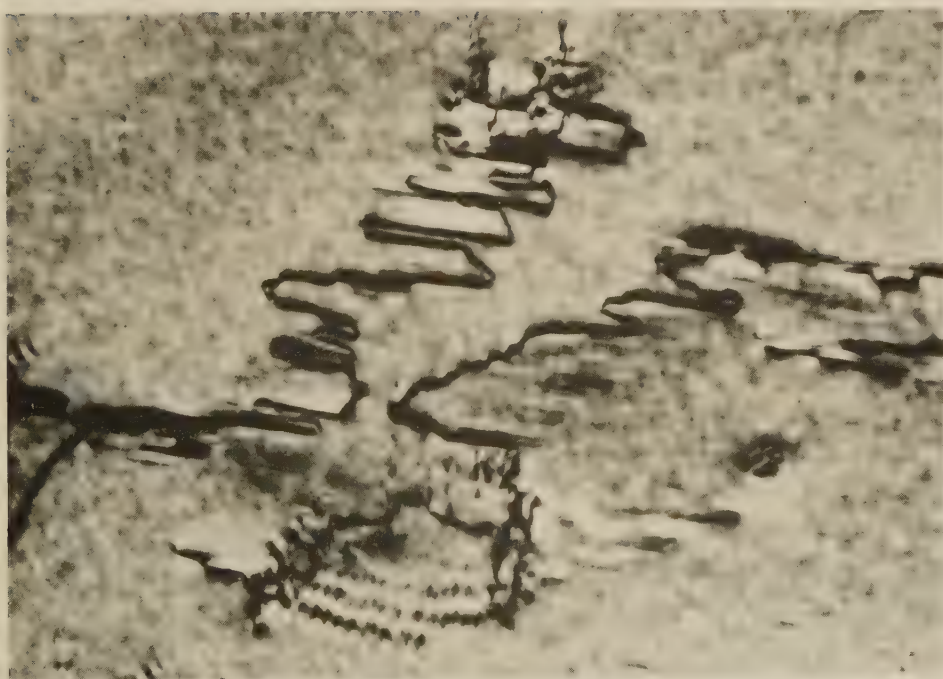


Fig. 48

x 50'000

gligeable.

La présence de tels rassemblements de lacunes n'a malheureusement pas pu être mise en évidence par microscopie électronique dans le cas des alliages Al-Mg-Si. Cependant OZAWA et KIMURA, s'ils n'ont pas non plus identifié directement par microscopie électronique de telles boucles dans un alliage Al-Si, ont pu apporter des preuves indirectes suffisamment convaincantes de leur présence. C'est seulement dans l'alliage Al-Cu que NUYTEN a pu détecter la formation initiale de boucles de lacunes (et la précipitation préférentielle ultérieure à leur aplomb).

1.2.2.2. Modes possibles de ségrégation des atomes de soluté en sursaturation

En fonction des deux modes d'élimination des lacunes envisagées, les atomes de soluté se ségrègent différemment.

a) Si l'hypothèse de l'élimination des lacunes sur les dislocations est prépondérante, il existe un flux de lacunes vers la dislocation, lequel peut entraîner une certaine quantité de soluté et créer ainsi un enrichissement autour des dislocations tandis que les lacunes y provoquent des crans ou des montées. Le reste du soluté relativement peu mobile, doit ensuite précipiter de façon homogène dans la matrice. Les photos (47) et (48) montrent d'ailleurs bien que les dislocations crantées sont décorées et que dans la matrice existe une précipitation homogène du soluté.

Avec ce mécanisme, nos résultats qui semblaient contradictoires initialement, deviennent explicables :

- la chute initiale de résistivité peut être due à l'élimination des lacunes,
- le léger durcissement observé dès les mêmes premiers moments du vieillissement serait causé par le blocage des dislocations, blocage dû à la forte montée locale des dislocations et à la présence d'atmosphères de soluté à leur voisinage,
- la précipitation homogène se comprend, comme nous l'avons vu,

si l'on admet que β' peut prendre naissance de façon aléatoire dans la matrice.

La transition de la précipitation homogène directe de β' à la précipitation hétérogène, qui a lieu autour de 225°C, est concevable par le fait que les parcours de diffusion du soluté sont alors assez importants pour que les dislocations deviennent des sites de germination plus favorables pour tous les atomes de soluté. A 250°C, on constate donc une précipitation entièrement hétérogène sur les dislocations et la très faible augmentation initiale des propriétés mécaniques peut être expliquée par la forte montée des dislocations et par leur ancrage grâce à des atmosphères de soluté. Ces atmosphères se forment à la faveur des lacunes arrivant sur les dislocations dès les premiers instants du vieillissement.

b) Si l'hypothèse de l'élimination des lacunes par rassemblement sous forme de microbocles est prépondérante, la formation d'atmosphères d'atomes de soluté autour de ces microbocles est possible par le même mécanisme que celui envisagé pour la décoration des dislocations. La précipitation ultérieure du soluté se ferait alors de façon "hétérogène" sur ces défauts, bien que le faciès soit d'apparence "homogène" quand les précipités sont suffisamment développés pour être visibles au microscope électronique*.

Un tel mécanisme de précipitation permet assez bien d'expliquer nos observations, tant en ce qui concerne l'évolution des propriétés ($\sigma_{0,2}$ et ρ) que celle de la structure. La formation de bocles cause à la fois la décroissance initiale de la résistivité (par élimination des lacunes) et l'augmentation initiale de la limite élastique (par apparition d'obstacles aux dislocations) ; de plus ces bocles peuvent servir de sites pour une précipitation apparemment "homogène" de β' .

Cette hypothèse est plus satisfaisante que celle de l'annihilation des lacunes sur les dislocations. En effet, le précipité intermédiaire β' peut ainsi germer directement et de façon hétérogène sur

* Bien entendu, il est toujours possible qu'une certaine quantité de soluté "décore" les dislocations.

les microbocles, ce qui semble beaucoup plus réaliste compte tenu des connaissances actuelles concernant la précipitation des phases intermédiaires telles que θ' dans Al-Cu (58) et η' dans Al-Zn-Mg (64, 65).

Ici, la transition d'une précipitation initiale homogène à une précipitation initiale hétérogène observée autour de 225°C serait expliquée par la déstabilisation des microbocles à ces hautes températures ; elles ne pourraient donc plus se former et servir de germes "homogènes" pour la précipitation de β' , les dislocations deviendraient alors, comme dans le cas précédent, les seuls sites de germination possibles.

Jusqu'à présent, nous avons toujours parlé de β' , précipitant de façon homogène ou hétérogène, mais nous n'avons jamais précisé la nature de ce précipité intermédiaire ; il est simplement le "précipité visible au microscope électronique" et susceptible de causer le durcissement. Cependant, il est fort possible que " β' homogène" et " β' hétérogène" soient deux phases intermédiaires distinctes, ou même que " β' homogène" soit un autre type de zones GP plutôt qu'une phase intermédiaire (éventuellement différenciées par la cohérence avec le réseau ou par la structure interne). Cette distinction complémentaire n'est d'ailleurs nullement en désaccord avec les interprétations précitées, et nous avons vu dans l'introduction, que les différents auteurs ayant cherché à analyser les phases intermédiaires, parlent bien de trois étapes distinctes avant la formation du précipité final Mg_2Si (ZGP non ordonnée avec lacunes intégrées, ZGP ordonnées sans lacunes, et phase β').

Signalons finalement qu'à 300°C, et ceci est valable pour les deux cas envisagés, l'augmentation initiale de $\sigma_{0,2}$, constatée jusqu'à 250°C, n'existe plus du tout puisqu'un temps d'incubation de 30 à 40 secondes précède le durcissement, par ailleurs très faible (fig. 14). Cette modification de la cinétique du durcissement est due à la formation directe du précipité final et stable $\beta(\text{Mg}_2\text{Si})$ qui se développe sous forme de plaquettes assez massives bien visibles sur les lames minces examinées au microscope électronique (fig. 30).

1.3. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS APRES TREMPE A L'ALCOOL

Nous venons de voir qu'après trempe à l'eau, où la plupart des lacunes restent "gelées" dans la matrice, un assez grand nombre d'hypothèses étaient nécessaires pour interpréter les résultats apparemment contradictoires issus des trois méthodes d'investigation utilisées. Dans le cas de la trempe à l'alcool, nous savons (cf § 1.1.) que les lacunes sont éliminées en grande partie pendant la trempe elle-même. L'état trempé à l'alcool est ainsi caractérisé par un petit nombre de lacunes "gelées" et de dislocations de trempe. Nous verrons maintenant si, pour cette situation initiale très différente, les hypothèses discutées auparavant permettent de comprendre les phénomènes observés.

1.3.1. Séquence possible de précipitation après trempe à l'alcool

1.3.1.1. Déductions des résultats relatifs aux mesures de la limite élastique

La série des courbes de variation de la limite élastique en fonction du temps (fig. 15) amène les remarques suivantes :

La valeur plus basse de $\sigma_{0,2}$ initiale a été attribuée au plus faible nombre de dislocations présentes (cf. § 1.1.) et l'évolution ultérieure des courbes est en général fortement ralentie par rapport à celle après trempe à l'eau.

En ce qui concerne l'évolution à l'ambiante, la variation de $\sigma_{0,2}$ révèle encore un durcissement du type "à froid", ce qui correspond à la formation unique de zones de GUINIER-PRESTON, mais la cinétique fortement ralentie confirme le rôle important que jouent les lacunes dans la formation des zones.

A des températures T_V un peu plus élevées (50°C et 80°C), l'allure du type "mixte" des courbes de $\sigma_{0,2}$ (avec palier) n'est pratiquement pas reconnaissable (fig. 15) :

- le durcissement initial avant le palier est extrêmement faible,
- le durcissement après palier est fortement ralenti par rapport à celui existant durant le vieillissement à 20°C (100 heures au lieu de 15 heures sont nécessaires pour atteindre $\sigma_{0,2} = 3,25 \text{ daN/mm}^2$).

Cette très faible montée initiale de $\sigma_{0,2}$ à 50 et 80°C montre que la formation de zones de Guinier-Preston existe, mais est ici encore plus fortement gênée.

A partir de 120°C et ceci jusqu'à 300°C, la courbe d'évolution de la limite élastique du type "mixte" (avec palier) est remplacée par un durcissement du type "à chaud". Il s'ensuit que la formation initiale de zones de Guinier-Preston à partir de cette température est entièrement supprimée à la faveur d'un précipité intermédiaire (tel que β').

D'après les mesures de $\sigma_{0,2}$, la température limite de formation des zones après trempe à l'alcool est comprise entre 80°C et 120°C, tandis que dans le cas d'une trempe à l'eau elle est située aux environs de 160°C.

1.3.1.2. Dédutions des résultats relatifs aux mesures de la résistivité

La séquence de décomposition de la solution solide sursaturée après trempe à l'alcool, telle que le révèle la variation de la résistivité, est dans ce cas identique à celle déduite des mesures des propriétés mécaniques :

- à 20°C, l'augmentation continue de $\Delta\rho$ (fig. 19a) indique la formation unique de zones de GP,
- entre 50°C et 80°C, l'augmentation initiale, mais très faible, de $\Delta\rho$ (fig. 19a) suggère encore la formation initiale des zones puis leur transformation en β' ,
- à partir de 120°C et jusqu'à 300°C, la décroissance lente de ρ après un assez long palier horizontal (fig. 19b) indique la formation initiale de β' .

Il faut toutefois signaler qu'à partir d'une température de vieillissement de 160°C, et comme dans le cas d'une trempe à l'eau, une baisse initiale de la résistivité est observée, mais cette chute est alors beaucoup plus faible ($-1,5 \text{ m}\mu\Omega \times \text{cm}$). Ce phénomène s'explique si l'on pense qu'après trempe lente, la baisse de résistivité, liée à l'élimination brutale des lacunes résiduelles piégées par les atomes de soluté, ne peut être que très faible.

1.3.1.3. Déductions des résultats relatifs aux observations de la micro-structure

Les observations au microscope électronique révèlent après 50 h de vieillissement à 120°C comme après 16 h à 160°C, une fine précipitation homogène (fig. 31 et 32), tandis qu'à partir de 200°C, la précipitation est entièrement hétérogène (fig. 33 et 34).

La transition de la précipitation homogène à la précipitation hétérogène qui, d'après le modèle classique, marquerait la fin de la formation initiale de zones de GUINIER-PRESTON, est donc située entre 160°C et 200°C, température bien inférieure à celle constatée après une trempe à l'eau (transition autour de 225°C).

* * *

Dans le cas de la trempe à l'alcool, les domaines de températures de transition entre la formation initiale des zones de GUINIER-PRESTON et l'apparition initiale de la phase β' , révélés par les différentes méthodes d'investigation, sont donc non seulement inférieurs à ceux déterminés après trempe à l'eau, mais également différents selon la méthode utilisée :

- les courbes de variation de la limite élastique et de la résistivité indiquent un changement du mode de précipitation entre 80°C et 120°C, cette transition marquant la fin de la formation initiale des zones de GUINIER-PRESTON.
- les observations au microscope au contraire, ne suggèrent un tel

changement qu'entre 160°C et 200°C puisque cette transition correspond à la modification du faciès de précipitation (transition homogène-hétérogène).

1.3.2. Interprétation des phénomènes observés au cours des vieillissements après trempe à l'alcool

Dans le cas de la trempe à l'alcool, la situation est assez différente de celle après la trempe à l'eau. Après une trempe lente, les lacunes ne peuvent plus être mises en cause pour les mouvements initiaux des atomes de soluté, puisqu'elles sont en grande partie éliminées pendant le refroidissement lui-même.

Il en résulte des conséquences importantes en ce qui concerne la ségrégation des atomes de soluté. Comme il existe cependant un domaine de température où les zones de Guinier-Preston ne peuvent plus se former et pour lequel la précipitation est encore trouvée homogène, nous sommes amenés à admettre que β' puisse encore précipiter de façon homogène, mais cette fois-ci indépendamment des lacunes. L'hypothèse faisant appel à la formation initiale de microbocles pouvant servir de germes homogènes n'est pas probable dans ce cas de la trempe lente, puisqu'il est peu vraisemblable que les lacunes s'éliminent pendant le refroidissement sous forme de "microbocles". Nous ne sommes cependant pas capables de préciser actuellement le mode d'élimination des lacunes durant le refroidissement lent.

La transition de la précipitation homogène à la précipitation hétérogène de β' , située entre 160°C et 200°C, s'explique par la déstabilisation de β' et par la plus grande mobilité des atomes de soluté qui peuvent alors atteindre les dislocations. Le fait que cette transition soit située à une température inférieure à celle constatée après trempe à l'eau (laquelle est aux environs de 225°C) signifie que les lacunes "gelées" par la trempe à l'eau, bien qu'éliminées au tout début d'un vieillissement, facilitent la formation de " β' homogène". Ainsi, à 200°C et après trempe à l'eau, suffisamment de sites de germination ("microbocles") sont encore présents pour permettre une précipitation homogène de β' , tandis qu'après trempe à l'alcool, les seuls sites possibles à cette température sont les

dislocations.

Nous voyons donc que le faible nombre de lacunes après trempe à l'alcool diminue non seulement considérablement la possibilité de développement des zones de Guinier-Preston (leur limite de formation étant abaissée à une température entre 80°C et 120°C), mais limite aussi le domaine d'existence de la phase intermédiaire homogène, lequel ne s'étend que jusqu'à une température comprise entre 160°C et 200°C.

1.3.3. Remarques concernant la cinétique de précipitation et l'amplitude du durcissement

Nous avons déjà dit que la formation des zones de Guinier-Preston était fortement ralentie après trempe à l'alcool, phénomène que nous avons attribué au faible nombre de lacunes "gelées" existant après trempe lente.

A une température supérieure à celle de la limite de formation des zones ($T_V = 160^\circ\text{C}$), où nous avons postulé que les lacunes "gelées" par la trempe à l'eau s'éliminaient dès les premiers instants du vieillissement, nous devrions nous attendre à une cinétique initiale identique pour les échantillons trempés à l'eau ou à l'alcool, puisque pour les deux modes de refroidissement les lacunes sont presque entièrement éliminées avant que la précipitation (homogène dans les deux cas) ne s'amorce. Le fait que la cinétique de précipitation initiale soit encore considérablement plus rapide après trempe à l'eau (comparer les figures 18a et 19a pour $T_V = 160^\circ\text{C}$) indique que le mode d'élimination des lacunes n'est sans doute pas le même dans les deux cas. Ceci semble assez logique : pendant le refroidissement relativement lent à l'alcool, les lacunes peuvent s'éliminer à des températures relativement élevées leur permettant des parcours de diffusion suffisamment longs pour arriver à des pièges très efficaces. Dans le cas d'une trempe rapide à l'eau suivie d'un réchauffage (à $T_V = 160^\circ\text{C}$), les lacunes vont au piège le plus proche qui peut n'être éventuellement qu'un piège temporaire d'où elles peuvent assez facilement s'échapper. Le modèle de formation initiale de boucles est assez compatible avec ce raisonnement, puisqu'on sait que les boucles sont en équilibre avec une certaine concentration de lacunes autour d'elles et qu'elles peuvent servir de "pompes à lacunes" et faciliter

ainsi la diffusion des atomes de soluté.

A 200°C, il est assez évident que la cinétique de décomposition soit plus rapide dans le cas des échantillons trempés à l'eau (voir tableau II), puisque la précipitation se fait encore de façon homogène. Après trempe à l'alcool par contre la précipitation, hétérogène cette fois, nécessite évidemment des parcours de diffusion des atomes de soluté plus importants afin qu'ils puissent atteindre les dislocations.

A 250°C, bien que la précipitation soit du type hétérogène pour les deux modes de trempe, la cinétique est également différente puisque les distances de diffusion nécessaires afin que les atomes de soluté atteignent les dislocations sont plus importantes après trempe à l'alcool qu'après trempe à l'eau (la densité de dislocations est en effet plus faible après une trempe lente).

Finalement, la valeur des maxima de limite élastique $\sigma_{0,2}$ atteints aux différentes températures (tableau I) sont fonction du mode de précipitation :

A 160°C, la précipitation est homogène dans les deux cas de vitesse de trempe et les maxima respectifs ont approximativement la même valeur.

Par contre à 200°C, la différence est très marquée puisqu'après trempe à l'alcool, la précipitation a lieu préférentiellement sur les dislocations tandis qu'après une trempe à l'eau elle reste encore du type homogène.

A 250°C, les deux modes de trempe donnant lieu à une précipitation hétérogène, c'est la différence du nombre initial de dislocations qui cause l'écart des maxima atteints ; les échantillons trempés à l'eau ayant un plus grand nombre de dislocations présentent une précipitation plus dense et plus fine bien qu'elle soit toujours hétérogène. La valeur maximale de $\sigma_{0,2}$ est alors plus élevée après un vieillissement sur un état trempé rapidement qu'après trempe lente à l'alcool.

1.4. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS A PARTIR D'UN ETAT REVERTI

Nous avons vu (§ 1.1.) que la structure de l'état réverti peut être considérée comme une solution solide totale ayant plus ou moins la même densité de dislocations qu'après trempe à l'eau, mais dans laquelle les lacunes sont éliminées.

Le vieillissement à l'ambiante est encore plus ralenti qu'après une trempe à l'alcool, puisqu'il faut 24 heures au lieu de 12 heures pour augmenter de $1,5 \text{ daN/mm}^2$ la limite élastique et 24 heures au lieu de 15 heures pour accroître de $20 \text{ m}\mu\Omega \times \text{cm}$ la résistivité. La cinétique de formation des zones la plus lente étant observée après réversion, ceci veut dire que le nombre de lacunes éliminées définitivement est alors plus important que durant une trempe lente.

L'effet du faible nombre de lacunes résiduelles se fait également sentir sur la température limite de formation des zones : à 80°C , l'évolution de la limite élastique ne présente déjà plus aucune augmentation initiale suivie d'un "palier", critère qui caractériserait le développement de zones à cette température. La limite de leur formation est donc située au-dessous de 80°C .

La transition entre la précipitation homogène et la précipitation hétérogène étant trouvée dans le même intervalle de températures que pour l'état initial trempé à l'alcool, (entre 160°C et 200°C , donc inférieur au cas d'une trempe à l'eau), il est manifeste que ce sont les lacunes qui influent sur la température de transition et non les dislocations (l'état réverti diffère de l'état trempé à l'eau essentiellement par le nombre de lacunes présentes).

En ce qui concerne le domaine de températures compris entre 80°C et 160°C , où nous observons la précipitation de β' homogène, les mêmes considérations que celles envisagées pour la trempe à l'alcool sont valables afin d'expliquer le phénomène.

Quant à la transition de précipitation de β' , quelques remarques sont possibles à propos de son incidence sur la cinétique de précipitation ainsi que sur l'amplitude du durcissement.

Tant que la précipitation, après réversion, est homogène, sa cinétique sera gouvernée par les lacunes. Elle sera donc légèrement plus lente qu'après trempe à l'alcool, et le maximum de $\sigma_{0,2}$ atteint sera également diminué par suite de la réduction de la probabilité de germination. Nous constatons effectivement que jusqu'à 160°C, la cinétique de vieillissement est plus lente après réversion qu'après trempe à l'alcool (comparer les figures 19 a et 20 a pour $T_V = 160^\circ\text{C}$), et que la valeur maximale de $\sigma_{0,2}$ est inférieure (tableau I).

A 200°C par contre, la précipitation est trouvée hétérogène après réversion comme après trempe à l'alcool. De ce fait, la cinétique de précipitation est plus rapide après réversion qu'après trempe à l'alcool (tableau II), puisque c'est alors la densité de dislocations (supérieure après réversion) qui conditionne le parcours de diffusion nécessaire pour que les atomes de soluté atteignent leur site de germination. Il est évident que les propriétés mécaniques maximales sont influencées aussi : le maximum de $\sigma_{0,2}$ est alors plus élevé après réversion (tableau I). Il convient cependant de signaler que le maximum n'atteint pas celui observé après trempe à l'eau, car la précipitation est encore homogène dans ce dernier cas.

Ce n'est qu'à 250°C que la précipitation est hétérogène pour les trois types d'états initiaux. Les maxima afférents aux deux états initiaux caractérisés par une grande densité de dislocations atteignent alors pratiquement la même valeur (tableau I), tandis que le maximum obtenu sur l'état trempé à l'alcool demeure inférieur par suite de la plus faible densité de dislocations.

La comparaison de la cinétique de précipitation et des valeurs maximales de $\sigma_{0,2}$ atteintes pour les trois états initiaux permet donc de montrer l'influence relative des lacunes et des dislocations présentes initialement dans le réseau de la solution solide sursaturée sur le processus de précipitation ultérieur.

1.5. A PROPOS DES RESULTATS CONCERNANT LES VIEILLISSEMENTS PAR TREMPÉ ETAGÉE

La méthode de trempe étagée a surtout été envisagée parce qu'elle a par ailleurs permis à de nombreux auteurs (58, 60) d'étudier la formation des zones de GUINIER-PRESTON et de déterminer notamment la température limite de leur stabilité. C'est en particulier PASHLEY (57) qui a précisé par cette méthode l'influence du nombre de lacunes sur la température critique T_C séparant les deux types de précipitation (homogène et hétérogène) dans le cas d'alliage Al-Zn et Al-Mg₂Si. En établissant une corrélation entre "précipitation homogène" et "formation initiale de zones de GUINIER-PRESTON"* , cet auteur interprète alors T_C comme étant la température limite de formation des zones ou "limite de stabilité" des zones.

En fait, ces auteurs considèrent la trempe étagée comme étant une trempe rapide, permettant de "geler" un grand nombre de lacunes, et l'on peut dans ces conditions s'étonner de la valeur très basse de T_C (225°C) pour un alliage Al-Mg₂Si à 1,2% de Mg₂Si.

Afin de tenter de définir de façon plus précise à quoi correspond ce type de traitement, nous avons entrepris quelques essais de trempe étagée sur notre alliage et nous avons trouvé, comme il a été dit dans le paragraphe 1.1., que la trempe étagée est plus comparable (tout au moins pour une température de trempe étagée $T_E \geq 160^\circ\text{C}$) à une trempe lente à l'alcool qu'à une trempe rapide à l'eau.

Pour les températures T_E plus basses (80°C et 120°C) l'évolution de la limite élastique est assez difficile à interpréter puisque les valeurs de $\sigma_{0,2}$ correspondant à des temps courts sont assez incertaines. Une tendance à un durcissement par palier (type "mixte") permet cependant

* Nous avons déjà vu que cette relation biunivoque n'était pas valable dans le cas de notre alliage Al-Mg₂Si ; mais nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe suivant.

de penser qu'à 80°C et 120°C le refroidissement est encore assez rapide pour permettre la formation initiale de zones de Guinier-Preston dès les premiers instants de maintien à la température de trempe.

Par contre, pour $T_E \geq 160^\circ\text{C}$ les courbes de $\sigma_{0,2}$ sont pratiquement superposables à celles obtenues après trempe à l'alcool, ce qui montre bien que les conditions sont alors comparables.

De plus, le faciès de la précipitation observée lors de ces vieillissements par trempe étagée (fig. 38 et 39) donne une température de transition du type homogène au type hétérogène comprise entre 160°C et 200°C, donc identique à celle relative aux échantillons trempés à l'alcool.

Toutes ces constatations semblent donc indiquer que la trempe étagée à $T_E \geq 160^\circ\text{C}$, correspond bien à une trempe lente permettant aux lacunes de s'éliminer avant que soit atteinte la température de vieillissement.

Les essais des différents auteurs pour déterminer par trempe étagée une température limite de formation de zones de Guinier-Preston donnent donc des résultats relatifs à des conditions de trempe lente et non, comme ces auteurs le croyaient, à des trempes rapides permettant de "geler" un grand nombre de lacunes.

1.6. SYNTHÈSE DES INTERPRÉTATIONS RELATIVES AUX RÉSULTATS FOURNIS PAR LES VIEILLISSEMENTS ISOTHERMES DIRECTS

La discussion des résultats essentiels de cette première étude relative au vieillissement direct sur différents états initiaux, est axée d'une part sur les processus de formation du premier produit de décomposition de la solution solide sursaturée en fonction de la température de vieillissement, d'autre part sur les mécanismes d'élimination des lacunes.

1er point : Processus de rassemblement des atomes de soluté

Les résultats concernant chacune des trois méthodes d'investiga-

tion utilisées (propriétés mécaniques par traction, résistivité et microscopie électronique) considérées indépendamment les unes des autres, auraient conduit à concevoir trois modèles très différents de précipitation. Afin de tenir compte des particularités observées dans la variation des propriétés mécaniques et électriques étudiées et pour les mettre en accord avec les observations de la micro-structure au microscope électronique, il a été nécessaire d'admettre qu'un "précipité intermédiaire" puisse se former directement de façon homogène. La nature de ce "précipité intermédiaire homogène" n'a cependant pas été déterminée : il peut s'agir aussi bien d'un deuxième type de zones de Guinier-Preston que d'un autre type de β' (on sait que la phase β' classique précipite de façon hétérogène sur les dislocations).

En s'appuyant sur cette hypothèse nous croyons que quelques-unes des divergences entre les résultats publiés antérieurement peuvent être expliquées. Nous pensons notamment que les observations de LUTTS (50) étaient en fait relatives à cette deuxième phase de décomposition et ne concernaient pas, comme il le prétendait, les zones de GUINIER-PRESTON classiques. On comprend ainsi que cet auteur ait observé des effets de diffusion des rayons X pour des températures de vieillissement anormalement élevées. Son interprétation (zones GUINIER-PRESTON initialement riches en lacunes) s'adapterait bien au modèle de formation initiale d'amas de lacunes sur lesquels viennent s'agglomérer ensuite les atomes de soluté.

D'autre part, les essais de trempe étagée entrepris par PASHLEY (57) afin de déterminer la température limite de formation des zones de GUINIER-PRESTON, ne donnent pas de résultats valables dans le cas des alliages Al-Mg₂Si. En effet, PASHLEY a postulé qu'il existait une relation entre la précipitation homogène et la formation initiale de zones ; or nous avons dit qu'un précipité autre que les zones de GUINIER-PRESTON formées à basse température pouvait également prendre naissance de façon homogène dans la matrice. La température ainsi déterminée par PASHLEY ne correspond donc pas à la limite de formation des zones de GUINIER-PRESTON classiques, mais simplement à celle du "précipité intermédiaire homogène".

En ce qui concerne les différentes étapes de précipitation, nous avons vu qu'après trempe rapide à l'eau, trempe lente à l'alcool, réversion ou trempe étagée, la nature des produits de décomposition initialement formés en fonction de la température de vieillissement croissante est la suivante :

- zones de GUINIER-PRESTON
- précipité intermédiaire homogène
- précipité intermédiaire hétérogène
- précipité stable

Cependant, les températures de transition entre ces différents stades sont très différentes selon l'état initial choisi, ainsi que l'indique le tableau IV.

TABEAU IV

état initial	température limite de formation des zones de GUINIER-PRESTON	température limite de précipitation homogène de β'	température limite de précipitation hétérogène de β'
état trempé à l'eau	entre 120 et 160°C	entre 200 et 250°C	300°C
état trempé à l'alcool	entre 80 et 120°C	entre 160 et 200°C	300°C
état réverti	< 80°C	entre 160 et 200°C	300°C
état obtenu par trempe étagée	~ 120°C (mal défini)	entre 160 et 200°C	300°C

L'influence des lacunes de trempe sur la formation des zones de GUINIER-PRESTON et sur celle du "précipité intermédiaire homogène" est donc très importante puisque le grand nombre de lacunes "gelées" après trempe à l'eau permet de constater la présence de l'un ou l'autre des deux types de précipités à une température plus élevée que dans les autres cas (les lacunes étant alors éliminées soit durant un refroidissement).

dissement plus lent par trempe à l'alcool ou trempe étagée, soit par trempe rapide suivie d'une réversion).

2ème point : Processus d'élimination des lacunes en sursaturation

L'évolution de la résistivité à haute température ($T_V > 120^\circ\text{C}$) a permis d'étudier l'élimination initiale des lacunes "gelées" et ceci avant que la précipitation ne s'amorce. La précipitation, nous l'avons vu, change de type quand les lacunes s'éliminent dès les premiers instants du vieillissement : le précipité intermédiaire homogène se forme alors au lieu des zones de GUINIER-PRESTON.

Pour être plus sûr de cette interprétation des courbes de résistivité, nous avons entrepris une étude comparative sur un autre alliage, l'aluminium-cuivre à 4% de Cu, pour lequel les processus fondamentaux de pré-précipitation et de précipitation sont beaucoup mieux connus. Cette étude a d'ailleurs été effectuée en collaboration avec J.P. MIRAILLE au Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole des Mines.(72).

Sachant que dans l'alliage Al-4% Cu, un revenu à 210°C après trempe rapide ne permet plus la formation des zones (puisque 210°C correspond à la température de réversion des zones "GP I" et "GP II" (73)), des revenus ont été effectués sur cet alliage à différentes températures comprises entre 210°C et 300°C sur un état trempé à l'eau glacée. Les mesures de résistivité montrent que l'évolution de ρ est identique à celle trouvée dans le cas de notre alliage Al-Mg₂Si à 0,8% de Mg₂Si. On constate en effet une baisse initiale de la résistivité dès 4 secondes de traitement, cette chute étant suivie d'une décroissance très lente et progressive. Il est important de noter que la baisse initiale, pour les quatre températures essayées (210, 240, 270 et 300°C) a exactement la même valeur.

Ces résultats ainsi que ceux obtenus avec des alliages à teneurs décroissantes en cuivre, permettent d'affirmer que c'est bien le mécanisme d'élimination des lacunes qui cause cette chute initiale. En effet, les calculs effectués à partir de ces résultats en utilisant la formule

de LOMER "généralisée" (72) permettent d'estimer le nombre de lacunes en équilibre dans la matrice de l'alliage, et les valeurs calculées sont en parfait accord avec les connaissances actuelles sur les défauts ponctuels, notamment en ce qui concerne l'énergie d'interaction "soluté-lacune" dans les alliages Al-Cu.

Cependant dans le cas des alliages ternaires tels que Al-Mg-Si, les modèles de calculs se compliquent tellement que nous ne pouvons raisonner que par analogie avec l'alliage simple Al-Cu. Il nous semble pourtant assez évident que le comportement des deux alliages puisse être identique.

Quant aux mécanismes d'élimination des lacunes durant le réchauffage à $T_v \geq 160^\circ\text{C}$ après une trempe rapide ou durant un traitement de refroidissement relativement lent (trempe à l'alcool), nous en avons déjà discuté antérieurement (§ 1.3.3.). Dans le cas d'une trempe rapide suivie d'un réchauffage, deux possibilités ont été envisagées, soit que les lacunes s'éliminent sur les dislocations en créant des montées, soit qu'elles se regroupent pour former des amas ("clusters", micro-boucles ou micro-cavités). Dans le cas d'un refroidissement assez lent par contre, les lacunes peuvent s'éliminer au cours même du refroidissement, et ceci à relativement haute température.

L'incidence de ces deux modes d'élimination des lacunes sur la cinétique de précipitation au cours d'un revenu ultérieur est manifeste : la cinétique initiale de précipitation après trempe à l'eau reste toujours plus rapide qu'après trempe à l'alcool, notamment lorsque la température T_v est égale à 160°C . Or, dans les deux cas, les lacunes sont considérées comme étant en grande partie éliminées avant toute ségrégation des atomes de soluté. Les lacunes sont donc plus facilement disponibles pour favoriser une diffusion ultérieure du soluté lorsqu'elles sont piégées au début d'un revenu après trempe rapide que lorsqu'elles "s'éliminent" à plus haute température au cours d'une trempe relativement lente sur des "puits plus parfaits" (que nous ne sommes pas capables de définir plus précisément).

A propos des mécanismes possibles d'élimination des lacunes,

des recherches antérieures et parallèles sur l'aluminium raffiné nous ont permis de définir certains paramètres essentiels. C'est notamment l'étude de la formation de "figures thermiques" (condensations locales de plusieurs millions de lacunes par figure), apparaissant aux interfaces métal-oxyde (surface) ou aux interfaces entre grains adjacents (joints de grains) qui a permis de définir ces paramètres (74, 75).

Nous avons trouvé que dans l'aluminium raffiné également (76) il existe une étape transitoire pour l'élimination des lacunes lors d'un traitement de réchauffage après trempe rapide. Durant cette période, pour une température de réchauffage de 200°C par exemple, les mesures de résistivité et les observations au microscope électronique* montrent que les lacunes (libres ou regroupées) sont déjà entièrement éliminées en quelques minutes alors que les figures thermiques ne se développent qu'après des temps beaucoup plus prolongés (ou à des températures plus élevées).

Les lacunes doivent donc, pendant cette période initiale du revenu à 200°C, être temporairement "éliminées", mais cependant potentiellement disponibles. Ce stade transitoire des lacunes est, dans le cas de l'aluminium également, discuté soit en termes de "crantage" ou de "montées" de dislocations, soit en termes de formation de "macro-boucles" (ni visibles par microscopie électronique, ni détectables par un excès de résistivité).

Nous avons essayé d'appliquer cette technique de "figures thermiques" à l'alliage Al-Mg₂Si, pour déterminer les conditions de

* FEDERIGHI (68) a montré par des mesures de résistivité que 2 minutes à 200°C suffisent pour faire entièrement disparaître l'excès de résistivité dû aux lacunes ; et SILCOX (77) a vu sur lames minces qu'à cette même température, les boucles formées à l'ambiante disparaissaient aussi totalement en quelques minutes.

leur formation et connaître l'incidence de cette formation sur les propriétés mécaniques et électriques. Malheureusement, nous n'avons jamais pu observer de telles "figures thermiques" sur cet alliage. Par contre, après des temps prolongés de revenu après trempe, nous avons constaté une abondante précipitation dans les interfaces :

- à la surface des échantillons (interface métal-oxyde), comme le montre la figure 49 ;

- dans les joints de grains (interface intercristalline), ainsi que l'indiquent les figures 50 et 51.

L'abondance de ces précipités aux interfaces suggère cependant qu'un grand nombre de lacunes arrive à ces interfaces permettant une diffusion notable des atomes du soluté dans la même direction. Ce flux de lacunes ne pourrait peut-être pas donner alors naissance à des figures thermiques car les lacunes en excès demeureraient piégées au niveau des précipités. Ce sont là des hypothèses et nous ne pouvons pas encore dire si les figures thermiques ne peuvent réellement pas se former dans le cas de l'alliage Al-Mg₂Si étudié.

En résumé, on peut dire que deux points importants demeurent à préciser, l'un concernant la nature de la "phase intermédiaire β " capable de précipiter de façon homogène, l'autre relatif aux modes possibles d'élimination des lacunes soit durant une trempe lente, soit par trempe rapide suivie d'un réchauffage.

2. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX VIEILLISSEMENTS AVEC ATTENTE A L'AMBIANTE

A la lumière des nouvelles connaissances sur les mécanismes de pré-précipitation et de précipitation déduites des résultats obtenus à la suite de nos essais de vieillissement direct avec différentes conditions initiales, nous pouvons assez bien expliquer l'effet de l'attente à l'ambiante entre trempe et revenu sur les caractéristiques mécaniques

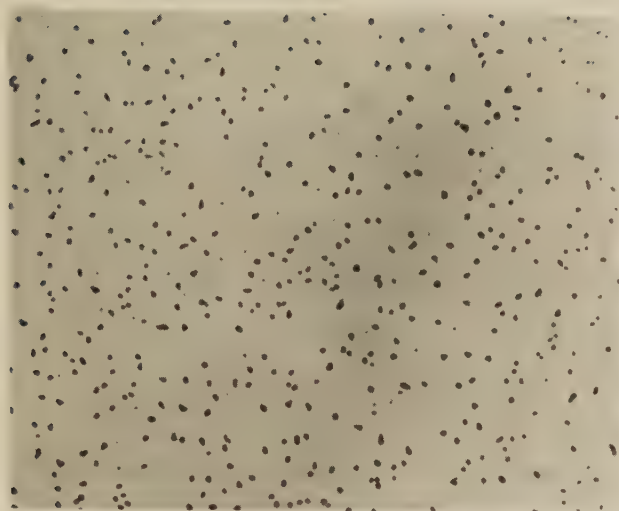


Fig. 49 - Micrographie optique de la surface d'un échantillon poli, trempé à l'eau et vieilli pendant 1 h à 300°C (x 1000).

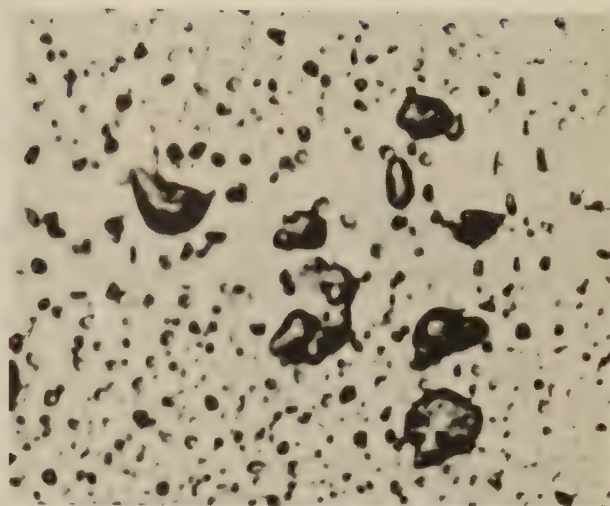


Fig. 50 - Micrographie optique du joint d'un échantillon fragilisé et rompu en présence de gallium liquide. Traitement thermique identique à celui de l'échantillon de la figure 49 (x 1000).



Fig. 51 - Micrographie faite au microscope électronique à balayage sur le même joint que celui de la figure 50 (x 2000).

de l'alliage Al-Mg₂Si à 0,8% de Mg₂Si.

2.1. CAS DES ECHANTILLONS TREMPES A L'EAU

Nous avons observé au cours d'un vieillissement conduit sitôt après trempe une précipitation homogène pour des températures de vieillissement T_v allant jusqu'à 200°C. L'effet de l'attente à l'ambiante, qui amène une décomposition de la solution solide à très fine échelle et dont les produits (zones GUINIER-PRESTON) sont très stables puisque la température T_R de réversion totale est égale à 280°C, peut donc s'expliquer par une augmentation du nombre des sites possibles de germination du "précipité intermédiaire homogène" due à cette décomposition homogène initiale.

Il en résulte une légère augmentation éventuelle des propriétés mécaniques telles que $\sigma_{0,2}$ puisque les précipités peuvent être plus nombreux. En effet l'on trouve en valeur relative un gain nul dans le cas du vieillissement à 160°C alors qu'il est de 10% pour le vieillissement à 200°C.

A 250°C les conditions sont différentes. Le maximum obtenu après un vieillissement direct est déjà fortement abaissé par le fait qu'à cette température la précipitation est hétérogène. L'on pourrait donc prévoir également que la décomposition homogène très fine obtenue par une attente à l'ambiante soit capable de favoriser la germination homogène des précipités. Or il n'en est rien puisqu'à 250°C les zones formées à l'ambiante sont déjà partiellement remises en solution. Ces zones ne peuvent donc plus servir de germes à la précipitation, qui demeure hétérogène même dans le cas d'une attente préliminaire à l'ambiante. Le maximum de $\sigma_{0,2}$ observé après attente est donc au même niveau que celui atteint lors d'un vieillissement direct.

2.2. CAS DES ECHANTILLONS TREMPES A L'ALCOOL

La situation est alors un peu différente :

A 160°C, le maximum de $\sigma_{0,2}$ obtenu par vieillissement direct est légèrement inférieur à celui atteint dans les mêmes conditions mais après trempe à l'eau, bien que la précipitation soit dans les deux cas homogène (cette différence a déjà été expliquée dans le paragraphe 1.2.2.3). La décomposition de la solution solide à l'ambiante étant assez semblable à celle obtenue dans le cas d'une trempe à l'eau, les zones, stables à 160°C, peuvent ici servir de germes à la germination du précipité intermédiaire et ainsi affiner sa distribution. Il en résulte une précipitation aussi fine que celle observée après trempe à l'eau ce qui conduit à une valeur de $(\sigma_{0,2})_{\max}$ identique. Le gain de limite élastique par rapport à l'état vieilli sitôt après trempe à l'alcool est donc ici de 14% environ.

Le cas le plus intéressant est celui du vieillissement à 200°C. Ici nous avons vu que le vieillissement direct conduisait déjà à une précipitation hétérogène, donc à de mauvaises propriétés mécaniques (un maximum de $\sigma_{0,2}$ peu élevé). Les produits de la décomposition homogène issus de l'attente à l'ambiante sont à 200°C encore assez stables pour pouvoir faire germer les précipités ultérieurs et ainsi, par l'attente à l'ambiante, le faciès de précipitation est radicalement changé :

- il est hétérogène sans attente
- et homogène avec attente

Les observations sur lames minces confirment cette constatation déduite des propriétés mécaniques, puisqu'en effet la figure 33 relative à un état vieilli directement à 200°C après trempe à l'alcool montre une précipitation hétérogène tandis que l'échantillon de la figure (52) pour lequel une attente de 100 heures à 20°C a précédé le revenu, présente une précipitation parfaitement homogène.

Le gain de propriétés mécaniques est alors forcément très important puisque nous trouvons près de 40% d'augmentation de $(\sigma_{0,2})_{\max}$.

En ce qui concerne le vieillissement à 250°C les résultats sont identiques avec ou sans attente à 20°C, mais à cause du nombre

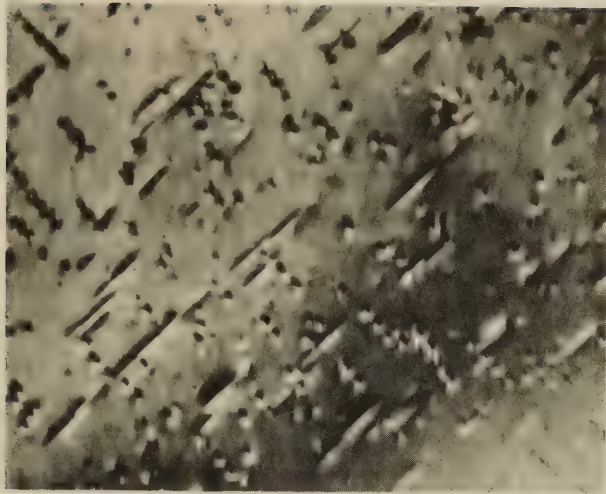


Fig. 52 - Micrographie électronique
d'un échantillon vieilli pendant
3 h à 200°C à partir d'un état
prévieilli 100 h à 20°C après trempe
à l'alcool (x 50'000)

initial plus faible de dislocations (voir § 1.1.), les maxima observés dans le cas de la trempe à l'alcool sont situés à une valeur nettement plus basse que ceux mesurés dans le cas d'une trempe à l'eau.

Les explications que nous venons de donner au sujet de l'effet de l'attente à l'ambiante entre trempe et revenu sont en fait assez classiques et en accord avec la théorie de LORIMER et NICHOLSON (65) ou de PASHLEY (60).

Il y a cependant un point que nous aimerions préciser. Tous les travaux publiés sur ce type d'alliage Al-Mg₂Si, où l'on a essayé de comparer les structures observées au microscope électronique et les propriétés mécaniques mesurées mentionnent la difficulté de relier le fort effet positif de l'attente avant revenu et le faciès de la précipitation. Sur lames minces en effet, le faciès observé, contrairement à d'autres alliages tels que Al-Zn-Mg (65), est toujours trouvé entièrement homogène après trempe et revenu.

Nos essais de trempe lente ou rapide suivie d'un vieillissement à 200°C ont cependant montré que la structure de l'état vieilli sans attente à l'ambiante peut être homogène (trempe rapide) ou hétérogène (trempe lente) * tandis que l'état vieilli avec attente révèle dans les deux cas de trempe un faciès homogène. Ainsi nos observations du faciès de précipitation sont en parfait accord avec le fort effet positif de l'attente (40% de gain en $(\sigma_{0,2})_{\max}$) dans le cas d'une trempe lente (faciès hétérogène sans attente et homogène avec attente) et avec le très faible effet positif (10%) dans le cas d'une trempe rapide (homogène dans les deux cas).

* Nous avons déjà précisé dans le chapitre des méthodes expérimentales que des précautions ont été prises afin de rendre la vitesse de trempe des échantillons destinés à l'observation au microscope électronique comparable à celle des éprouvettes de traction (Chapitre II, § 4.3.).

La vitesse de refroidissement est donc importante et nous pensons que si les échantillons observés au microscope électronique sont très minces et les éprouvettes de mesure des propriétés mécaniques assez massives, des désaccords dans l'interprétation des essais peuvent facilement résulter des conditions très différentes de trempe. Les observations au microscope électronique peuvent ainsi révéler une précipitation homogène pour les vieillissements avec ou sans attente, du fait que les échantillons très minces ont subi une trempe brutale, tandis que les propriétés mécaniques mesurées sur des échantillons massifs (donc trempés plus lentement) montrent un effet important de l'attente à l'ambiante, leur structure dans l'état vieilli sans attente étant en fait hétérogène.

3. DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS RELATIFS AUX ESSAIS DE REVERSION

Nous avons vu dans l'introduction que la réversion des propriétés mécaniques obtenues après un vieillissement à l'ambiante, est due à la mise en solution du produit de décomposition (généralement les zones de GP) issu du vieillissement à l'ambiante. En conséquence la température minimale à laquelle on observe une réversion totale, marque la limite de stabilité des zones. De plus, cette température limite de stabilité des zones coïncide dans le cas des alliages Al-Cu et Al-Cu-Mg, avec la température limite de leur formation, ainsi que l'ont montré BETON et ROLLASON (25).

Or, nos résultats sur l'alliage Al-Mg₂Si révèlent un comportement très différent puisque la réversion totale s'opère à une température plus élevée que celle correspondant à la limite de formation $T_{L.F.}$ du premier produit de décomposition de la solution solide sursaturée (température de réversion totale $T_{R.T.} = 280^{\circ}\text{C}$; $T_{L.F.} \sim 160^{\circ}\text{C}$, dans le cas d'une trempe initiale à l'eau). Il est par ailleurs important aussi de noter que dans le cas d'une trempe initiale à l'alcool, la température de réversion totale $T_{R.T.}$ est trouvée peu différente de celle relative à la trempe initiale à l'eau ($\sim 260^{\circ}\text{C}$ au lieu de $\sim 280^{\circ}\text{C}$), tandis que nous savons que la température limite de formation des zones est fortement affectée par la vitesse de trempe (entre 80°C et 120°C au lieu de $\sim 160^{\circ}\text{C}$).

Ces deux résultats importants concernant la température limite de formation et la température de réversion totale semblent donc montrer que dans

cet alliage Al-Mg₂Si le comportement du premier produit de décomposition de la solution solide sursaturée (que nous avons nommé "zones" de GUINIER-PRESTON) est assez particulier.

Afin de compléter les données concernant ces particularités, nous avons donc entrepris des essais de réversion sur deux autres alliages Al-Mg₂Si, l'un à teneur plus faible (0,63% Mg₂Si) l'autre à teneur plus élevée (1,26% Mg₂Si). Après trempe à l'eau et vieillissement de 100 heures à 20°C, la température de réversion totale T_{R.T} des propriétés mécaniques a été trouvée égale à :

- T_{R.T} $\cong$ 250°C pour Al-0,63% Mg₂Si
- T_{R.T} $\cong$ 330°C pour Al-1,26% Mg₂Si

Par ailleurs, les résultats de mesures de résistivité obtenus par MURAKAMI (26) sur trois alliages Al-Mg₂Si à différentes teneurs en Mg₂Si nous ont permis de connaître la température limite de formation des "zones" de GUINIER-PRESTON en fonction de la teneur en Mg₂Si. A partir du critère de la chute initiale brutale de la résistivité après trempe rapide, tel qu'il a été discuté dans le paragraphe 1.2.1.2 (page 66) les trois températures limites de formation des "zones" ont été déterminées :

- T_{L.F.} $\cong$ 160°C à 200°C pour Al-0,5% Mg₂Si
- T_{L.F.} $\cong$ 200°C à 230°C pour Al-1,0% Mg₂Si
- T_{L.F.} $\cong$ 250°C à 270°C pour Al-1,5% Mg₂Si

Les deux séries de valeurs de températures limites (T_{R.T} et T_{L.F.}) peuvent alors être portées dans le diagramme d'équilibre du système Al-Mg₂Si (fig. 53) et l'on constate qu'elles définissent deux courbes, l'une relative à la température limite de formation des "zones", l'autre indiquant la température limite de stabilité de ces mêmes produits.

Ces nouveaux essais confirment donc notre résultat sur l'alliage à 0,8% de Mg₂Si et indiquent un très fort écart entre les deux températures limites. En d'autres termes les "zones", une fois formées, sont très stables, même au-delà de leur température limite de formation.

Il a été mentionné dans plusieurs publications antérieures (51, 53)

que les zones de GUINIER-PRESTON formées dans l'alliage $\text{Al-Mg}_2\text{Si}$ subissent une réorganisation de leur structure interne au cours du vieillissement, leur stabilité étant ainsi accrue au fur et à mesure que le temps de vieillissement est plus prolongé. Cette modification de la structure interne des zones intervenant entre le moment de leur formation et celui de leur réversion, peut être responsable du grand écart observé entre la température limite de formation et la température limite de réversion de ces "zones".

Cependant, deux faits particuliers relatifs à cet alliage peuvent conduire à formuler une autre hypothèse permettant d'expliquer l'écart entre les deux températures limites :

- Tout d'abord, dans le cas des alliages $\text{Al-Mg}_2\text{Si}$, aucun auteur n'a jusqu'à présent été capable de prouver expérimentalement l'existence de zones de GUINIER-PRESTON, ni par rayons X, ni par microscopie électronique lorsque la température de vieillissement est inférieure à 80°C .
- Ensuite, la courbe de résistivité ne présente pas de maximum au cours d'un vieillissement à l'ambiante, mais après une montée initiale rapide on observe une croissance très lente et continue et ceci pour des temps de maintien à l'ambiante allant jusqu'à plusieurs mois.

La première remarque nous incite à penser que les zones formées à des températures voisines de l'ambiante sont de taille extrêmement réduite ; la deuxième remarque semble montrer que les zones se développent très difficilement au-delà d'une certaine dimension et qu'il existe éventuellement même une taille limite au-delà de laquelle, après un développement initial assez rapide, la croissance n'est presque plus possible.

A partir de ces remarques, il est possible d'envisager une nouvelle hypothèse concernant la nature même des "zones" de GUINIER-PRESTON. Considérant l'association successive d'atomes de soluté nécessaire pour former des "amas" (ou "zones"), une explication possible peut être avancée en admettant que l'énergie d'association ("amas" - atomes de soluté), que nous appelons E_B , passe par un maximum (relatif) lors de la croissance de ces "amas" :

Supposons que le premier regroupement possible dans la solution solide sursaturée de l'alliage soit l'association d'un atome de magnésium avec un atome de silicium et appelons E_{B_1} l'énergie d'association de cette paire $\langle \text{Mg} + \text{Si} \rangle$. L'étape suivante du regroupement sera l'association d'un autre atome de magnésium avec cette paire $\langle \text{Mg} + \text{Si} \rangle$ préexistante, l'énergie de cette association étant appelée E_{B_2} .

On sait qu'un tel complexe $\langle 2 \text{ Mg} + 1 \text{ Si} \rangle$ rétablit sensiblement la périodicité du réseau de l'aluminium, ce qui permet de relaxer en grande partie l'énergie élastique emmagasinée auparavant à la fois autour des atomes de soluté isolés et autour des associations $\langle \text{Mg} + \text{Si} \rangle$. Il s'ensuit que le triplet $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ est beaucoup plus stable que l'association $\langle \text{Mg Si} \rangle$. En d'autres termes, il est plus difficile de redissocier $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ en $\langle \text{Mg} \rangle + \langle \text{Mg Si} \rangle$ que de séparer $\langle \text{Mg Si} \rangle$ en $\langle \text{Mg} \rangle + \langle \text{Si} \rangle$ donc $E_{B_2} > E_{B_1}$.

Puisque le complexe $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ est bien accommodé avec le réseau de la matrice, il est pensable que le fait de rajouter un autre atome à ce complexe abaisse sa stabilité. L'énergie E_{B_3} d'association $\langle 2 \text{ Mg} + \text{Si} \rangle + \langle \text{Mg} \rangle$ ou $\langle \text{Si} \rangle$ serait donc inférieure à E_{B_2} .

En portant l'énergie d'association E_B en fonction du nombre d'atomes N dans un complexe donné, nous trouvons une courbe montrant un maximum relatif pour le complexe $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ (fig. 54).

La remontée ultérieure de E_B pour les valeurs de N plus grandes marque la croissance de complexes plus importants en taille acquérant alors une meilleure stabilité.

Ce modèle à l'échelle atomique permet de comprendre une grande partie des phénomènes observés lors de la décomposition de la solution solide sursaturée dans le domaine de températures voisines de l'ambiante.

Les complexes formés sont alors non pas des "zones" de GUINIER-PRESTON classiques, mais de petits groupes $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ très stables dont les liaisons internes sont suffisamment importantes pour résister dans une certaine mesure au cisaillement par les dislocations, ce qui explique le durcissement assez faible observé pour un vieillissement à 20°C.

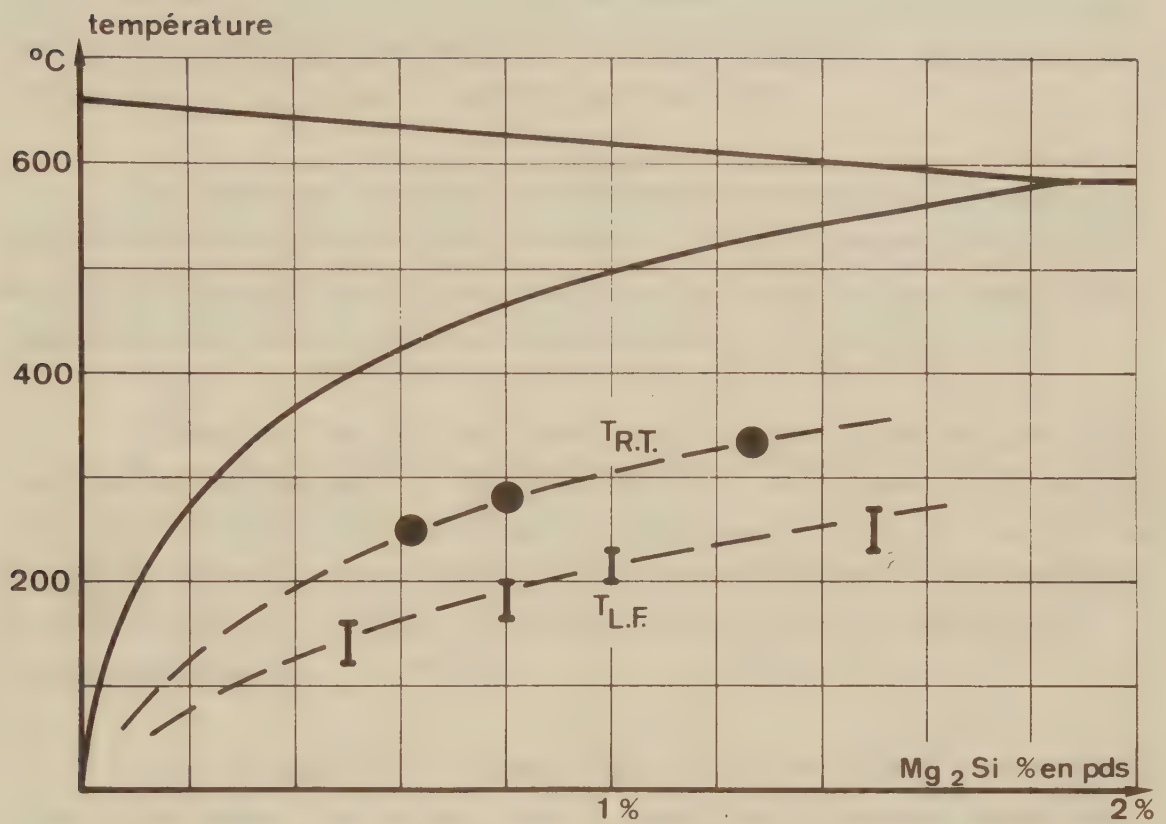


Fig. 53 - Diagramme d'équilibre du système quasi-binaire $\text{Al-Mg}_2\text{Si}$ avec les courbes définissant la température de réversion totale $T_{R.T.}$ et la température limite de formation $T_{L.F.}$ des "zones" de GUINIER- T . PRESTON.

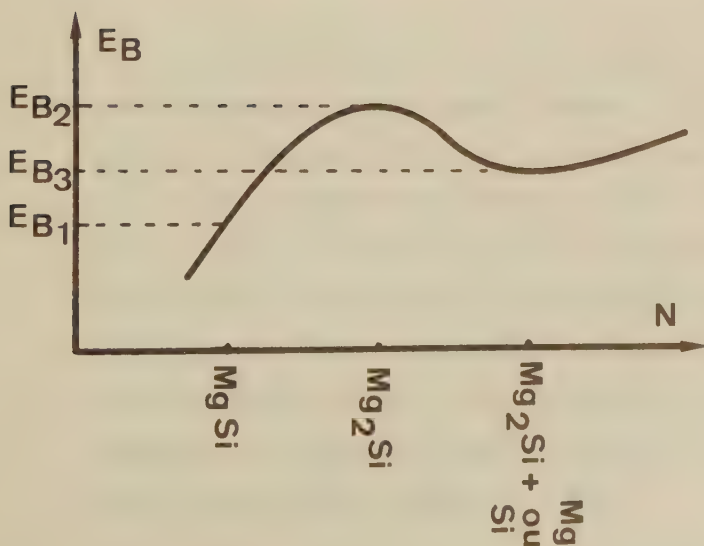


Fig. 54 - Energie d'association E_B d'un atome de soluté avec un "amas" en fonction du nombre N d'atomes de soluté contenus dans l'"amas".

L'évolution de la résistivité au cours du vieillissement à l'ambiante est compatible avec le modèle proposé : le fait qu'elle ne présente pas de maximum mais qu'elle croisse lentement de façon continue indique que le groupement $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ ne peut que très difficilement se développer davantage ($E_{B_3} < E_{B_2}$ comme le montre la figure 54).

La formation initiale des complexes dépendant de l'énergie E_{B_1} relativement faible de l'association $\langle \text{Mg} + \text{Si} \rangle$, la température limite¹ de formation de tels complexes doit être plus basse que leur température limite de stabilité qui dépend elle-même de E_{B_2} ($E_{B_2} > E_{B_1}$).

Finalement le fait que divers auteurs n'ont pu déterminer l'existence de véritables zones de GUINIER-PRESTON ni par rayons X, ni par microscopie électronique à des températures inférieures à 80°C dans ces alliages Al-Mg₂Si, corrobore notre hypothèse concernant la formation de complexes de très petite taille $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ mais très stables dans le domaine des basses températures.

Dans ce modèle très schématique, nous avons entièrement négligé le rôle que jouent les lacunes dans la formation et éventuellement dans la structure de ces "amas". Nous avons dit dans les paragraphes précédents, que lors d'une trempe initiale à l'eau, les lacunes gelées restaient "associées" aux atomes de soluté tant que la température était comprise dans le domaine où la formation de "zones" était possible. Nous devons donc maintenant en tenir compte.

Pour vérifier si les lacunes restées dans le réseau lors du vieillissement à 20°C après trempe à l'eau étaient, elles seules, réversibles à une température plus basse que celle de réversion totale T_{RT} , nous avons déterminé l'évolution de la résistivité au cours d'un traitement à 200°C suivant un prévieillissement de 100h à 20°C (fig. 44). Une très faible chute initiale est observée, mais pas suffisamment importante pour pouvoir être interprétée comme étant due à l'élimination des lacunes. Ces dernières restent donc "piégées" initialement à 200°C, bien que cette température conduise à leur élimination immédiate si l'échantillon y est porté sitôt après trempe à l'eau.

Nous ne pouvons pas préciser le mode de "piégeage" des lacunes, la question se pose de savoir si elles suivent les atomes de soluté lors du regroupement et participent alors comme partie intégrante à la structure des "amas".

Le fait que dans le cas d'une trempe lente à l'alcool, le développement des "amas" est toujours possible, semble indiquer qu'un grand excès de lacunes n'est pas indispensable à leur formation. Toutefois la cinétique et la température limite de leur formation sont fortement affectées par le nombre des lacunes.

Le rôle des lacunes dans le regroupement initial des atomes de soluté n'est donc pas très bien connu, mais nous pensons que le modèle proposé pour expliquer les phénomènes de réversion peut quand même rester valable, que les lacunes participent ou non à la formation des groupes $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$.

CHAPITRE V - CONCLUSIONS

1. REMARQUES GENERALES

Indépendamment des résultats obtenus au cours de cette étude, nous voudrions tout d'abord insister sur deux remarques d'ordre général. Nos essais relatifs aux processus de décomposition des solutions solides sursaturées Al-Mg-Si ont en effet montré qu'il est indispensable :

- d'utiliser conjointement plusieurs techniques expérimentales,
- de connaître la vitesse réelle de trempe puisqu'elle conditionne les processus de décomposition ultérieure de la solution solide sursaturée.

En ce qui concerne le premier point, nous avons vu que les interprétations des résultats dépendent de la méthode d'investigation choisie (mesure des propriétés mécaniques, détermination de la résistivité ou observation au microscope électronique). En effet, les techniques employées ont une sensibilité différente vis à vis des phénomènes physiques étudiés (nombre et répartition des lacunes ou des dislocations, distribution et taille des ségrégations de soluté ou des précipités), par ailleurs les critères choisis ne sont pas identiques. C'est ainsi que les interprétations communément admises basées sur l'allure des courbes de durcissement, celles qui sont généralement données à partir de l'évolution de la résistivité, et celles qui s'appuient sur les modifications du faciès de la microstructure ne sont pas forcément cohérentes. On comprend qu'il puisse en résulter des différences notables entre les diverses déterminations des intervalles de températures dans lesquels un produit de décomposition donné est susceptible de se former.

En ce qui concerne le second point, relatif à la vitesse de trempe, nous avons pu montrer que cette vitesse joue un rôle très important et qu'elle affecte notamment la température de transition entre la précipitation de faciès homogène et la précipitation hétérogène. Le mode

de précipitation conditionnant les propriétés mécaniques maximales qu'il est possible d'atteindre, on conçoit que le paramètre "vitesse de trempe" ait besoin d'être rigoureusement contrôlé lors des essais reliant la structure aux propriétés mécaniques. C'est ainsi que, pour un même mode de trempe, les échantillons massifs de traction n'ont pas obligatoirement la même structure après vieillissement que les lames minces destinées à être examinées au microscope électronique, leur vitesse de refroidissement étant évidemment différente. Il n'est donc pas étonnant que les résultats et les interprétations des différents auteurs puissent être divergents.

2. PRINCIPAUX RESULTATS OBTENUS

Ces remarques préliminaires nous paraissent essentielles puisqu'elles justifient en quelque sorte l'optique choisie pour la conduite de ce travail.

Les résultats que nous avons obtenus concernent principalement :

- la séquence des stades d'évolution structurale de l'alliage, en fonction de la température de vieillissement, après divers modes d'obtention de la solution solide Al-Mg-Si sursaturée ;
- l'influence des lacunes de trempe sur les processus de décomposition de la solution solide et sur le faciès de la précipitation ;
- le rôle des dislocations de trempe sur les propriétés mécaniques maximales ;
- enfin la stabilité des "zones" formées initialement dès les premiers instants de vieillissement.

2.1. SEQUENCE DES STADES D'EVOLUTION STRUCTURALE DES ALLIAGES Al-Mg₂Si

Afin d'expliquer toutes les particularités observées à propos des variations des propriétés mécaniques et électriques, afin également

de relier ces particularités aux modifications de structure observées au microscope électronique, nous avons été amené à envisager 4 étapes distinctes dans le processus de précipitation, toutes pouvant se former initialement, sitôt après trempe :

- celle des zones de GUINIER-PRESTON,
- celle d'une phase intermédiaire précipitant de façon homogène (que nous avons appelée " β' homogène"),
- celle d'une phase intermédiaire précipitant de façon hétérogène (" β' hétérogène"),
- celle du précipité final et stable β .

Il convient cependant de préciser que, n'ayant pas tenté de déterminer directement la structure de la phase intermédiaire, il est parfaitement possible que la nature de " β' homogène" soit plus proche d'un type particulier de zone que de celle de " β' hétérogène" (C'est le même problème qui s'est posé pour les alliages Al-Cu où l'on a longtemps parlé de zones "GP II" et de phase θ).

2.2. INFLUENCE DES LACUNES SUR LES PROCESSUS DE DECOMPOSITION

Nous avons en fait étudié deux grandes classes de traitements conduisant tous initialement à une solution solide sursaturée :

- ceux pour lesquels l'alliage présente encore un grand nombre de lacunes dès les premiers instants de vieillissement (trempe à l'eau),
- ceux qui conduisent à une solution solide où les lacunes sont en grande partie éliminées (trempe à l'alcool, trempe étagée ou traitement de réversion).

De la comparaison du comportement de ces deux types de solution solide lors des vieillissements ultérieurs, nous pouvons dire que les lacunes en sursaturation ne sont pas indispensables pour la formation des zones GP ou celle de la phase intermédiaire " β' homogène". Lorsque les lacunes sont initialement peu nombreuses, la cinétique de décomposition de la solution solide est simplement plus lente et les températures limites de formation des zones et de " β' homogène" sont trouvées

inférieures à celles mesurées dans le cas où les lacunes sont présentes en grand nombre.

Lorsque les lacunes sont "gelées" en grand nombre, leur mode d'élimination, dès les premiers instants de vieillissement, conditionne la précipitation ultérieure : soit qu'elles "crantent" les dislocations présentes, soit qu'elles forment des microboucles servant de germes à la précipitation de " β' homogène".

2.3. ROLE DES DISLOCATIONS SUR LES PROPRIETES MECANIQUES MAXIMALES

La vitesse de trempe conditionne la quantité de dislocations présentes au début du traitement de vieillissement et, si le nombre de dislocations influe déjà sur la limite élastique mesurée sitôt après trempe, l'effet de ces défauts est particulièrement net après des vieillissements conduisant à la formation de " β' hétérogène". On peut même dire en pratique, que la densité de dislocations initiale n'affecte la valeur des propriétés maximales atteintes après revenu que si la précipitation est hétérogène. Le plus ou moins grand nombre de dislocations conditionne alors la finesse de la précipitation et des propriétés mécaniques plus élevées sont atteintes quand les dislocations existent en grand nombre après la trempe initiale.

Par contre, il est important de souligner que la température de transition entre la précipitation homogène et la précipitation hétérogène n'est affectée que par le nombre de lacunes "gelées" présentes aux tous premiers instants du vieillissement ; les dislocations n'interviennent pas pour modifier cette température et les propriétés mécaniques étant évidemment plus élevées si la précipitation est homogène, on peut en déduire que les lacunes jouent un rôle plus important que les dislocations en ce qui concerne les propriétés mécaniques maximales.

2.4. STABILITE DES ZONES DE GUINIER-PRESTON

Bien que l'évolution de la résistivité et celle des propriétés

mécaniques montrent que le premier stade de décomposition de la solution solide sursaturée correspond à la formation de zones GP, nous avons signalé que ces zones présentent une particularité essentielle. Contrairement à ce qui existe dans le cas d'autres alliages tels que Al-Cu, la température limite de réversion des zones est bien supérieure à la température limite de leur formation.

Cette stabilité très grande des zones peut simplement être due à une modification de leur structure interne intervenant entre le moment de leur formation et celui de leur réversion.

Le fait que les tous premiers stades de la décomposition de la solution solide Al-Mg₂Si ne sont pas décelables ni par diffraction des rayons X, même par la méthode de diffusion centrale de GUINIER, ni par diffraction électronique nous incite à penser que les produits initialement formés sont de très petites dimensions et ne comportent qu'un nombre très réduit d'atomes (2 ou 3 seulement).

Nous avons donc été amenés à formuler une autre hypothèse basée sur la grande stabilité de "triplets" $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$. La formation de ces triplets nécessiterait la présence préliminaire de "doublets" $\langle \text{MgSi} \rangle$ peut stables auxquels viendrait s'adjoindre un atome de magnésium. Cette hypothèse permet elle même d'expliquer l'écart existant entre la température de formation des complexes $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$ et celle de leur remise en solution puisque la formation dépend de la stabilité du doublet $\langle \text{MgSi} \rangle$ tandis que la réversion dépend de la stabilité, plus grande, du triplet $\langle \text{Mg}_2\text{Si} \rangle$. Bien entendu, il ne s'agit éventuellement que d'une hypothèse de travail et des expériences sont nécessaires pour la confirmer.

* * *

En résumé, on peut dire que le comportement des alliages Al-Mg₂Si durant les vieillissements après trempe est relativement complexe. L'étude en est délicate puisque les premiers produits de décomposition de la solution solide sursaturée ne sont pas directement décelables par les techniques habituelles. Comme ces premiers stades de précipitation conditionnent la structure finale, donc les propriétés électriques ou mécaniques, il est indispensable de bien préciser le rôle de la structure

initiale après trempe sur les processus de précipitation. Quel que soit le mode de trempe et quelle que soit la température de vieillissement, nous avons montré que le mode d'élimination des lacunes joue un rôle essentiel et conditionne les processus de décomposition de la solution solide sursaturée.

Pour expliquer les particularités observées dans la variation des propriétés mécaniques et électriques étudiées et pour les relier aux observations au microscope électronique, nous avons été amenés à admettre que la phase intermédiaire peut précipiter **directement** de façon homogène ou hétérogène sans que nous ayons pu préciser si la phase "homogène" est plutôt de la forme "zone de GUINIER-PRESTON" ou de la forme β' .

Afin d'aller plus loin dans l'interprétation des résultats, des essais devraient donc être entrepris en vue de bien préciser d'une part les mécanismes réels de l'élimination des lacunes et pour déterminer d'autre part la véritable nature des "phases" intermédiaires.

REFERENCES

- (1) WILM, A. - *Métallurgie* 8 (1911) 223 et 650.
- (2) DRP Nr. 244 554, 20.3.1909.
- (3) MERICA, P.D., WALTENBERG, R.G., FREEMAN, J.R. - *Sci. Pap. Bur. Stand.* 347, (1919) ; *Trans. AIME* 64 (1921) 3.
- (4) MERICA, P.D., WALTENBERG, R.G., SCOTT, H. - *Sci. Pap. Bur. Stand.* 347, (1919) ; *Trans. AIME* 64 (1921) 41.
- (5) MERICA, P.D. - *Trans. AIME* 99 (1932) 13.
- (6) FRAENKEL, W. - *Z. Metallkunde* 12 (1920) 427.
- (7) FRAENKEL, W. - *Z. Metallkunde* 18 (1926) 189.
- (8) FRAENKEL, W. - *Z. Metallkunde* 22 (1930) 84.
- (9) FRAENKEL, W. - *Z. Metallkunde* 23 (1931) 172.
- (10) GAYLER, M.L.V. - *J. Inst. Met.* 28 (1922) 213.
- (11) GAYLER, M.L.V. - *J. Inst. Met.* 29 (1923) 507.
- (12) GAYLER, M.L.V. - *J. Inst. Met.* 30 (1924) 139.
- (13) GAYLER, M.L.V. - *J. Inst. Met.* 60 (1937) 249.
- (14) WASSERMANN, G., WEERTS, G. - *Metallwirtschaft* 16 (1935) 605.
- (15) FINK, W.L., SMITH, D.W. - *Trans. AIME* 112 (1936) 284.
- (16) GUINIER, A. - *Compt. Rend. Acad. Sci.* 206 (1938) 1641.
- (17) GUINIER, A. - *Nature* 142 (1938) 569.
- (18) PRESTON, G.D. - *Nature* 142 (1938) 570.
- (19) GUINIER, A. - *J. Phys. Radium* 8 (1942) 124 (3).
- (20) GUINIER, A. - *Compt. Rend. Acad. Sci.* 231 (1950) 655.
- (21) HARDY, H.K., HEAL, T.J. - *Progress in Metal Physics* (5), Perg. Press London 1954.
- (22) HARDY, H.K. - *J. Inst. Met.* 79 (1951) 321.
- (23) SILCOCK, J.M., HEAL, T.J., HARDY, H.K. - *J. Inst. Met.* 82 (1954) 239.
- (24) KOESTER, W., BRAUMANN, F. - *Z. Metallkunde* 43 (1952) 193.
- (25) BETON, R.H., ROLLASON, E.C. - *J. Inst. Met.* 58 (1957) 77.
- (26) MURAKAMI, Y., KOMATSU, S., ONISHI, T. - *Mem. Fac. Eng. Kyoto Univ.* 31 (1969) 130.
- (27) MATHYAS, Z. - *Phil. Mag.* 39 (1948) 277.

- (28) HARRISON, W.A. - Acta Met. 8 (1960) 168.
- (29) WILKES, P. - Acta Met. 26.(1968) 863.
- (30) MOTT, N.F. - J. Inst. Met. 60 (1937) 267.
- (31) MURAKAMI, M., KAWANO, O., MURAKAMI, Y. - Acta Met. 17 (1969) 29.
- (32) DARTYGE, E., DARTYGE, J.M., LAMBERT, M., GUINIER, A. - J. de Physique 30 (1969) 82.
- (33) SMUGERESKY, J.E., HERMAN, H., POLLACK, S.R. - Acta Met. 17 (1969) 883.
- (34) TURNBULL, D., ROSENBAUM, H.S., TREAFITIS, H.N. - Acta Met. 8 (1960) 295.
- (35) FEDERIGHI, T., THOMAS, G. - Phil. Mag. 7 (1962) 127.
- (36) OKAMOTO, J., KIMURA, H. - Mater. Sci. Eng. 4 (1969) 39.
- (37) Brev. Suisse, Nr. 85 606, 18.12.1916.
- (38) Brev. USA, Nr. 1 472 731, 2.12.1921.
- (39) HANSON, D., GAYLER, M.L.V. - J. Inst. Met. 26 (1921) 321.
- (40) Brev. Suisse, Nr. 110 527, 21.5.1924.
- (41) Brev. Suisse, Nr. 134 994, 31.8.1929.
- (42) Dépôt de marque (Suisse) Nr, 117 213, 9.9.1946.
- (43) Dépôt de marque (Suisse) Nr, 194 970, 13.11.1962.
- (44) HARRIS, I.R., VARLEY, P.C. - J. Inst. Met. 82 (1953/54) 379.
- (45) EVANS, D.W. - Aluminium 38 (1962) 219.
- (46) OWEN, E.A., PRESTON, G.D. - Proc. Phys. Soc. 36 (1924) 341.
- (47) GEISLER, A.H., HILL, J.K. - Acta Cryst. 1 (1948) 238.
- (48) GUINIER, A., LAMBOT, H. - Compt. Rend. Acad. Sci. 227 (1948) 74.
- (49) LAMBOT, H. - Rev. Méta. 47 (1950) 709.
- (50) LUTTS, A. - Thèse Fac. Sci. Appl. Liège (1960).
- (51) LUTTS, A. - Acta Met. 9 (1961) 577.
- (52) THOMAS, G. - J. Inst. Met. 90 (1961/62) 57.
- (53) PANSERI, C., FEDERIGHI, T. - J. Inst. Met. 94 (1966) 99.
- (54) CERESARA, S., DI RUSSO, E., FIORINI, P., GIARDA, A. - Mater. Sci. Eng. 5 (1969/70) 220.
- (55) DE SORBO, W., TREAFITIS, H.N., TURNBULL, D. - Acta Met. 6 (1958) 401.
- (56) KIMURA, H., KIMURA, A., HASIGUTI, R.R. - Acta Met. 10 (1962) 607.
- (57) PASHLEY, P. - "The Mechanism of Phase Transformation in Crystalline Solids", Inst. Met. Monogr. 33 (1969) 41.
- (58) LORIMER, G., NICHOLSON, R. - "The Mechanism of Phase Transformation in Crystalline Solids", Inst. Met. Monogr. 33 (1969) 36.
- (59) PASHLEY, P., RHODES, J., J. SENDOREK, A. - J. Inst. Met. 94 (1966) 44.

- (60) PASHLEY, P., JACOBS, M., VIETZ, J. - J. Phil. Mag. 16 (1967) 52.
- (61) BONMARIN, J., ADENIS, D. - Mém. Sci. Rev. Mét. 66 (1969) 895.
- (62) MOULIN, J., DEVELAY, R., ADENIS, D. - Rev. Alum. (1970) 70.
- (63) MOULIN, J., ADENIS, D., DEVELAY, R. - Mém. Sci. Rev. Mét. 66 (1969) 881.
- (64) EMBURY, I., NICHOLSON, R. - Acta Met. 13 (1965) 403.
- (65) LORIMER, G., NICHOLSON, R. - Acta Met. 14 (1966) 1009.
- (66) Communication privée BECK, G. - (Ecole des Mines de Nancy).
- (67) KIMURA, H., MADDIN, R. - "Lattice Defects in Quenched Metals", Acad. Press, N.Y. (1965) 319.
- (68) FEDERIGHI, T. - "Lattice Defects in Quenched Metals", Acad. Press, N.Y. (1965) 217.
- (69) NUYTEN, J. - Acta Met. 15 (1967) 1765.
- (70) NUYTEN, J. - La Metall. Ital. 7 (1969) 305.
- (71) OZAWA, E., KIMURA, H. - Acta Met. 18 (1970) 995.
- (72) MIRAILLE, J.P., BRICHET, C., LEROY, M. - à paraître.
- (73) GRAF, R. - Thèse Paris 1965.
- (74) WYON, G. - Métaux 45 (1970) n° 537, 538, 541 et 543.
- (75) BRICHET, C., PEETERS, L., ROQUES-CARMES, C., WYON, G. - C.R. Acad. Sci. Paris 271 (1970) 617.
- (76) ROQUES-CARMES, C., PEETERS, L., BRICHET, C., AUCOUTURIER, M., WYON, G., LACOMBE, P. - Metallography 4 (1971).
- (77) SILCOX, J., WHELAN, M. - Phil. Mag. 5 (1960) 1.

